

Neutronenphysikalische Untersuchungen zu uranfreien Brennstoffen

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation von
Dipl.-Phys. Christoph Pistner
aus Bensheim

Referent: Prof. Dr. Franz Fujara
1. Korreferent: Prof. Dr. Dieter H. H. Hoffmann

Tag der Einreichung: 12.07.2005
Tag der Prüfung: 20.02.2006

Darmstadt 2006
D17

Die Seiten 8, 122, 123, 125, 129, 133, 157, 159, 162, 163, 168, 170, 172, 174, 175, 177, 185, 199, 202, 204 enthalten Abbildungen, welche in Farbe erstellt wurden. Eine elektronische Fassung dieser Arbeit ist im Internet unter www.mcmath.de zu finden.

Executive Summary

This thesis analyzes the potential of uranium-free fuels (inert matrix fuel, IMF) for the disposition of existing plutonium stockpiles. Since no new plutonium is produced during irradiation of IMFs, they are an attractive alternative to currently used uranium-plutonium mixed-oxide fuels (MOX). Computer-based neutronics calculations are used to compare IMF to MOX. The program system MCMATH was developed to provide a largely automated calculation of the development of reactivity and reactivity-coefficients during irradiation of fuels with different initial composition. Based on these simulations, a criteria-based comparison of MOX and IMF was performed. The comparison revealed several attractive features of IMF, although it does not provide a conclusive assessment of the fuels considered. Questions for future research towards this end were identified.

Today, about 260 t of weapon-grade plutonium (WPu) exist in military stockpiles. Approximately the same amount of reactor-grade plutonium (RPu) is stored by the civilian nuclear-power industry. Civilian stockpiles have grown continuously during the last decade. Currently, only about 10 t of plutonium per year are used to manufacture MOX for light-water reactors (LWR). Because plutonium can be used to make nuclear weapons, special emphasis must be given to the nonproliferation aspects of plutonium disposal options. Several such options have been investigated in recent years. This thesis compares the two fuel concepts MOX and IMF for plutonium disposal in existing LWRs. Calculations for IMF were based on a fuel matrix made of yttrium-stabilized zirconium oxide ((Y,Zr)O₂), which is widely seen as an especially attractive candidate.

To allow for a quantitative assessment of MOX versus IMF, Chapter 3 examines various approaches for a criteria-based evaluation of plutonium disposition options. The following criteria are identified: technical feasibility; political-social acceptability; environmental, safety, and health aspects; nuclear nonproliferation; and economics. Important indicators for a quantitative comparison of MOX and IMF with respect to these criteria are derived. Reactivity control is identified as a central question for technical feasibility. Burnup-dependent development of reactivity coefficients is an important safety issue. The fraction of plutonium eliminated and the quality of the remaining plutonium with respect to its usability in nuclear weapons are important for the nonproliferation criterion, and analyzed here by finding the heat-rate and the neutron background from spontaneous fission in the plutonium.

Burnup-dependent properties of MOX and IMF were calculated to evaluate each of the criteria. Since the cross-section libraries of most existing cell burnup programs focus on

conventional uranium fuels, they cannot be easily used to investigate IMF. For this reason, the program system MCMATH was specially developed and validated in the course of this thesis. As discussed in Chapter 4, MCMATH couples the neutron transport program MCNP with routines programmed in *Mathematica*. *Mathematica* is used to calculate the burnup-dependent fuel composition on the basis of effective neutron cross-sections from MCNP. Furthermore, MCNP is used to calculate several important reactivity-coefficients at various times during burnup. The results of MCMATH were compared with MCODE, a similar program system recently developed at the Massachusetts Institute of Technology, which helps to validate the accuracy and demonstrates the comparable efficiency of MCMATH.

In order to fully validate a complex program system like MCMATH, it is reasonable to compare its results with a broad array of other programs. Several benchmarks have been used to validate MCMATH and the results are given in Chapter 5. This demonstrates the high accuracy of MCMATH. The burnup-dependent reactivity is calculated by MCMATH with an accuracy of about 1%. MCMATH also achieves good accuracy in the burnup-dependent fuel composition when compared to other programs. For major isotopes (those of plutonium, important fission products, and burnable poisons) the error margins at end of life are below 3-5%.

Only specific temperature differences for the fuel-temperature coefficient (FTC) could be determined given the limitations of available MCNP cross-section libraries. However, within these limitations, good results in comparison to other programs were achieved with an error margin of less than 10%. High-energy neutron cross-sections play an especially important role in determining the moderator void coefficient (MVC), especially for large voids. Because there are significant uncertainties in the nuclear data for some of the important isotopes related to the calculation of the MVC, discrepancies lie in the tens of percent. Finally, the determination of the boron-worth coefficient (BWC) by MCMATH and other program systems revealed discrepancies of less than 2-3%.

Since the properties of spent IMF and MOX are resulting mainly from the achieved total burnup, Chapter 6 introduces a methodology for the calculation of the achievable reactivity-limited total burnup based on cell burnup calculations. This was implemented in *Mathematica* routines that allow for a systematic analysis of a large number of different initial fuel compositions as a function of the plutonium concentration or the amount of burnable poisons used.

MCMATH was used to perform calculations for MOX with different initial concentrations of uranium and either RPu or WPu. The achievable total burnup for various fuel compositions was found. IMF with different initial concentrations of RPu (0.4–1.0 g/cm³) and WPu (0.35–1.0 g/cm³) with an inert matrix of (Y,Zr)O₂ were also investigated. Chapter 7 discusses the results. Reference fuels were defined as those that could achieve a target burnup of 300 or 450 kWd/cm³, corresponding to 33.3 or 50 MWd/kg(HM) in MOX. It was found that IMF had considerably higher average initial reactivities.

The high initial reactivities of IMF motivate the question of reactivity control for these fuels, which is investigated in Chapter 8. For the reference fuels defined in Chapter 7, the

burnup-dependent BWC was calculated. While the BWC was found to be relatively constant during burnup for MOX, there was considerable burnup-dependence for IMF due to the decreasing plutonium concentration. The boron concentration needed to compensate for the reactivity change during burnup was estimated. It was shown that MOX fuels require 1500–1800 ppm, compared to 1100–1200 ppm for conventional uranium fuels. For IMF, extremely high concentrations of 3500–4500 ppm boron would be needed, which are not feasible in existing LWRs.

The reactivity control problem in IMF might be overcome by the use of burnable poisons (BP). Chapter 9 investigates boron, europium, gadolinium, and erbium as possible BPs. For each of these, a suitable initial concentration was estimated and burnup calculations for IMF fabricated from RPu and WPu were performed for the same set of IMF compositions that were evaluated without BPs. Because gadolinium and erbium proved to be superior to boron and europium, a total of four initial concentrations of these BPs was investigated. This allowed quantification of the impact of BPs on the achievable total burnup of IMF. As in the case of IMF without BPs, reference fuels for each BP type and concentration were derived for the target burnups. The burnup-dependent BWC was also calculated for these fuels. For all BPs, reference-fuels that require a boron concentration of less than 2000 ppm are identified.

Chapter 10 compares all reference fuels on the basis of their safety and nonproliferation performance using the criteria defined in Chapter 3. For FTC, the burnup-dependent values of -1 to -2 pcm/K in IMF show somewhat less negative values than MOX or uranium fuels, which have values of -2 to -4 pcm/K. The use of erbium as a BP gives a negative contribution to the FTC at the beginning of IMF's life because of the distinct resonance structure in the neutron cross-section of its main isotope. The MVC of IMF show considerably less negative values when compared to MOX or uranium fuels. The MVC of IMF is also highly dependent on burnup. Again, erbium gives the best behavior of all the investigated BPs, as the high thermal cross-sections of other burnable poisons give a strong positive contribution to the MVC at the beginning of the fuel's life. Gadolinium gives an especially high value for the MVC for fresh IMF fuel. Overall, erbium appears to be the most promising BP for IMF from a safety point of view.

The achievable plutonium reduction is much higher with IMF than with MOX. For the MOX types investigated, the initial plutonium is reduced by about 30% in the case of RPu and 35% for WPu. For IMF (without BPs), the reduction is 77% and 89% respectively. For the well-behaved IMF with erbium as BP, there is a reduction of 70% for RPu and 76% for WPu. In addition to the much higher plutonium reduction and the correspondingly lower remaining plutonium concentration in the spent fuel, the isotopic composition of the remaining plutonium is shifted towards heavier isotopes, which are less useful in nuclear weapons. For MOX made with RPu, the remaining plutonium has a heat-rate 1.3 times higher, and a spontaneous neutron rate 1.53 times higher than RPu. For the IMF made with RPu and using erbium as BP, the heat-rate is about 2.15 times higher, and the spontaneous neutron rate 2.85 times higher than in RPu. For MOX fabricated from WPu, the remaining plutonium after burnup has an isotopic composition similar to RPu. For IMF fabricated with WPu and an erbium BP, the heat-rate of the remaining

plutonium is comparable to RPu, whereas the spontaneous neutron rate is about a factor of two higher than in RPu, and a factor of 11.5 higher than in WPu.

Overall, IMF appear to be a promising alternative to MOX. The strong decrease in the reactivity of IMF during burnup can be effectively compensated by the use of suitable BP. With respect to nuclear nonproliferation, IMF show clear advantages to MOX. On the other hand, there are clear differences in the burnup-dependent reactivity coefficients between MOX and IMF. Further investigation is needed to clarify the impact of these differences on reactor safety.

Inhaltsverzeichnis

Executive Summary	1
1 Einleitung	1
2 Die Plutonium-Situation heute: Bestände und Beseitigungsoptionen	3
2.1 Weltweit vorliegende Bestände von Plutonium in abgetrennter Form	4
2.1.1 Typische Plutoniumzusammensetzungen	5
2.1.2 Abschätzung der vorliegenden Bestände	6
2.2 Anlagen zum Umgang mit Plutonium-Beständen	9
2.2.1 Fabrikationsanlagen für MOX-Brennstoffe	9
2.2.2 Für MOX-Nutzung lizenzierte Reaktoren	9
2.3 Zivil-militärische Ambivalenz von Plutonium	13
2.4 Diskutierte Ansätze zum Abbau vorliegender Plutonium-Bestände	15
2.5 Uranfreie Brennstoffe	19
2.5.1 Definition eines uranfreien Brennstoffs	22
3 Bewertungskriterien für einen Vergleich von MOX und IMF	25
3.1 Bisherige Ansätze zu kriteriengeleiteten Bewertungsverfahren	26
3.2 Technische Machbarkeit	28
3.3 Politisch/gesellschaftliche Akzeptanz	29
3.4 Umwelt- und Sicherheitsaspekte	29
3.4.1 Reaktivitätskoeffizienten	30
3.4.2 Dynamische Untersuchungen	31
3.5 Nukleare Nichtverbreitung	32

3.6	Wirtschaftlichkeit	36
3.7	Zusammenfassung physikalisch relevanter Indikatoren und Identifikation der Fragestellungen	38
4	Methodik der Untersuchung von uranfreien Brennstoffen	39
4.1	Grundlagen und Begriffe	40
4.1.1	Abbrand- und Neutronentransportgleichung	40
4.1.2	Effektive Wirkungsquerschnitte	42
4.1.3	Totaler Neutronenfluss und Leistungsdichte	43
4.2	Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten in MCNP	44
4.2.1	Das Neutronen-Transportprogramm MCNP	44
4.2.2	Energieabhängige Wirkungsquerschnitte in MCNP	46
4.2.3	Zellrechnungen	46
4.3	Iterative Lösung der Abbrandgleichungen mit <i>Mathematica</i>	48
4.3.1	Aktinide	48
4.3.2	Spaltprodukte	50
4.3.3	Verwendete Abbrandintervalle und zweiter Iterationsschritt	52
4.4	Bestimmung von Reaktivitätskoeffizienten im Rahmen von MCMATH	53
4.4.1	Bor-Wirksamkeit (BWC)	54
4.4.2	Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)	55
4.4.3	Moderator-Temperaturkoeffizient (MTC)	56
4.4.4	Moderatordichte-Koeffizient (MVC)	58
4.4.5	Statistische Genauigkeit von MCNP-Berechnungen und Reaktivi- tätskoeffizienten	59
4.5	Vergleich zwischen MCMATH und MCODE	62
4.5.1	Das Abbrandprogramm ORIGEN2	62
4.5.2	Vergleichsrechnung für MCODE und MCMATH	64
4.5.3	Vergleich der mit MCODE und MCMATH bestimmten Nuklidkon- zentrationen	64
4.5.4	Einfluss der verwendeten Yielddaten	71

4.5.5	Einfluss der Häufigkeit der Berechnung der Wirkungsquerschnitte auf die berechneten Nuklidkonzentrationen	73
5	Validierung des Programmsystems MCMATH	77
5.1	OECD/NEA-Benchmark MOX-Brennstoffe	78
5.1.1	Spezifikationen des Benchmarks (Phase IV-B)	79
5.1.2	Multiplikationsfaktoren k_∞ von MOX-Brennstoffen	80
5.1.3	Nuklidzusammensetzungen der MOX-Brennstoffe	81
5.1.4	Zusammenfassung der Ergebnisse	83
5.2	OECD/NEA-Benchmark: MVC für MOX	89
5.2.1	Spezifikationen des Benchmarks	89
5.2.2	Vergleich der Ergebnisse	91
5.2.3	Zusammenfassung	93
5.3	IMF-Benchmark: Uranfreie Brennstoffe	97
5.3.1	Zielsetzung und Teilnehmer	97
5.3.2	Benchmark Spezifikationen	97
5.3.3	Multiplikationsfaktoren k_∞	99
5.3.4	Nuklidkonzentrationen	101
5.3.5	Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)	105
5.3.6	Moderatordichte-Koeffizient (MVC)	108
5.3.7	Bor-Wirksamkeit (BWC)	111
5.3.8	Zusammenfassung	112
6	Entladeabbrand und Lineares Reaktivitätsmodell	113
6.1	Lineares Reaktivitätsmodell	114
6.1.1	Wesentliche Grundannahmen des linearen Reaktivitätsmodells . . .	115
6.1.2	Korrekturen aufgrund von Neutronenverlusten durch Leckage	118
6.1.3	Bestimmung des erreichbaren Entladeabbrands B_d aus $\rho_\infty(B)$. . .	118
6.2	Exemplarische Darstellung des linearen Reaktivitätsmodells	120
6.2.1	Reaktivitätsverlauf für Uran-Brennstoffe	121
6.2.2	Erreichbarer Entladeabbrand B_d	121

6.2.3	Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$	124
7	Untersuchung von Referenzbrennstoffen (MOX, IMF)	127
7.1	MOX-Brennstoffe	127
7.1.1	Reaktivitätsverlauf	128
7.1.2	Erreichbarer Entladeabbbrand B_d	129
7.1.3	Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$	131
7.2	Uranfreie Brennstoffe (IMF)	132
7.2.1	Reaktivitätsverlauf bei IMF	133
7.2.2	Erreichbarer Entladeabbbrand B_d	134
7.2.3	Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$	135
7.3	Definition von Referenzbrennstoffen für MOX und IMF	137
8	Reaktivitätskontrolle und Bor-Wirksamkeit	139
8.1	Prinzipien der Reaktivitätskontrolle	139
8.2	Abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit für die Referenzbrennstoffe	142
8.3	Referenzbrennstoffe, Anfangsreaktivität und Bor-Bedarf	144
9	Uranfreie Brennstoffe und brennbare Neutronengifte (BP)	147
9.1	Mögliche brennbare Neutronengifte	147
9.1.1	Bor als BP	150
9.1.2	Europium als BP	151
9.1.3	Gadolinium als BP	152
9.1.4	Erbium als BP	154
9.1.5	Schlussfolgerungen	155
9.2	Abbrandrechnungen zu IMF mit BP	155
9.2.1	Reaktivitätsverlauf von IMF mit verschiedenen BP	156
9.2.2	IMF mit BP und erreichbarer Entladeabbbrand B_d	158
9.3	Variation der Anfangskonzentration ausgewählter BP	160
9.3.1	Reaktivitätsverlauf und gewählte BP-Konzentration	161
9.3.2	Erreichbarer Entladeabbbrand B_d	163

9.4	Definition von Referenzbrennstoffen mit BP	164
9.5	Mittlere Anfangsreaktivität und Bor-Bedarf für IMF mit BP	167
9.5.1	Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$	167
9.5.2	Bor-Wirksamkeit für IMF mit BP	171
9.5.3	Referenzbrennstoffe mit BP und mittlere Anfangsreaktivität	175
10	Diskussion der Referenzbrennstoffe	183
10.1	Diskussion von Sicherheitseigenschaften der untersuchten Brennstoffe . . .	183
10.1.1	Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)	184
10.1.2	Moderatordichte-Koeffizient (MVC)	190
10.2	Nichtverbreitungsaspekte	198
10.2.1	Plutoniumkonzentration	198
10.2.2	Isotopenzusammensetzung	201
10.3	Zusammenfassende Darstellung der wesentlichen Brennstoffeigenschaften .	205
11	Zusammenfassung	211
A	Abkürzungen und Formelzeichen	215
A.1	Verwendete Abkürzungen	215
A.2	Häufig verwendete Formelzeichen	217
B	Wirtschaftlichkeits- und Versorgungs-Aspekte	219
B.1	Wirtschaftlichkeitsaspekte	219
B.2	Plutoniumnutzung und Uranbedarf	222
C	Zur Waffenverwendbarkeit nuklearer Materialien	225
D	Zu den Einheiten des Abbrands	233
E	Abschätzung der Neutronenverluste aufgrund von Leckage	235
F	Verfügbare Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken für MCNP	239
F.1	Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte	240

INHALTSVERZEICHNIS

F.1.1	Doppler-Verbreiterung von Resonanzen	240
F.1.2	Streumatrix	241
F.2	Vorliegende Bibliotheken	241
Literatur		249

Kapitel 1

Einleitung

Mit dem Ende des Ost-West-Konflikts entstand Anfang der 90er Jahre ein neuer Impuls zur weitgehenden nuklearen Abrüstung zwischen den USA und Russland. In der Folge wurden in beiden Ländern große Mengen an Plutonium aus militärischen Beständen (*weapons-grade plutonium*, WPu) als nicht länger benötigt eingestuft und zur Beseitigung vorgesehen. Gleichzeitig stagnierte im Bereich der zivilen Kernenergienutzung die geplante Verwendung von Plutonium als Brennstoff in Kernreaktoren aufgrund des Einfrierens bzw. der Beendigung von Programmen zur Errichtung schneller Brüter in den meisten Industrieländern.¹ Die im Rahmen der Entsorgung von abgebranntem Brennstoff durchgeführte Wiederaufarbeitung wurde demgegenüber nicht beendet, so dass auch im zivilen Bereich heute große Bestände an Plutonium in separierter Form gelagert werden (*reactor-grade plutonium*, RPu). Zum Umgang mit solchen vorliegenden Plutonium-Beständen wurde eine Anzahl verschiedener Optionen vorgeschlagen, von denen heute jedoch lediglich eine Verwendung von Plutonium als Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoff (MOX) großtechnisch umgesetzt ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wird untersucht, ob sogenannte uranfreie Brennstoffe (*inert matrix fuel*, IMF) für den Abbau vorliegender Plutonium-Bestände in existierenden Leichtwasserreaktoren (LWR) eine attraktive Alternative zur MOX-Nutzung darstellen können. Um den Umfang und die gegenwärtigen Pläne zur Umsetzung von Plutonium zusammenzufassen, wird in Kapitel 2 zunächst die heutige Situation sowohl im zivilen wie im militärischen Bereich knapp diskutiert. Dabei wird auch die Option der Verwendung von uranfreien Brennstoffen sowie der gegenwärtige Stand der Entwicklung solcher Brennstoffe knapp dargestellt. Auf dieser Basis wird eine IMF-Standardmatrix für die weiteren Untersuchungen definiert. Daran anschließend wird in Kapitel 3 diskutiert, wie sich verschiedene Optionen zum Umgang mit Plutonium anhand wesentlicher Kriterien bewerten lassen. Dabei wird ein besonderer Fokus auf Aspekte der nuklearen Nichtverbreitung gelegt. Es werden hierzu Indikatoren aufgestellt, die es erlauben sollen, eine quantitative Basis für einen Vergleich verschiedener Optionen zur Plutoniumbeseitigung in Reaktoren zur Verfügung zu stellen.

¹Ausnahmen stellen heute im wesentlichen Russland und Japan dar.

Für die hier beabsichtigte Analyse von Reaktoroptionen zum Umgang mit Plutonium sind neutronenphysikalische Untersuchungen in der Form von Zell-Abbrandrechnungen notwendig. In Kapitel 4 werden dafür benötigte Grundlagen eingeführt und das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Programmsystem MCMATH, welches auf dem Monte-Carlo Neutronentransportprogramm MCNP und *Mathematica* basiert, vorgestellt. Hier wird auch auf die Bestimmung von Reaktivitätskoeffizienten mittels MCNP im Rahmen von MCMATH eingegangen. Das Kapitel schließt mit einem Vergleich des in dieser Arbeit genutzten Programmsystems MCMATH zu anderen heute verfügbaren Programmsystemen am Beispiel von MCODE. Um die mittels MCMATH erzielten Ergebnisse zu validieren, wurden verschiedene internationale Benchmarks mit MCMATH berechnet. Kapitel 5 stellt die Ergebnisse der MCMATH-Rechnungen im Vergleich mit den Ergebnissen anderer Benchmark-Teilnehmer dar. Dabei werden Zell-Abbrandrechnungen sowohl für klassische MOX-Brennstoffe wie für IMF durchgeführt und wesentliche Reaktivitätskoeffizienten bestimmt.

Um die für eine Bewertung von verschiedenen Brennstoffen aus Sicht der nuklearen Nichtverbreitung benötigten Daten bereitzustellen, ist eine direkte Vergleichbarkeit der untersuchten Brennstoffe eine Voraussetzung. Als wichtige Randbedingung wird dafür der reaktivitätsbegrenzte erreichbare Entladeabbrand herangezogen. Für die Bestimmung des Entladeabbrands wird im Rahmen dieser Arbeit das lineare Reaktivitätsmodell zugrundegelegt. Kapitel 6 fasst die wesentlichen Annahmen des Modells zusammen und diskutiert die Umsetzung dieses Modells in MCMATH. In Kapitel 7 werden dann zunächst IMF und MOX-Brennstoffe auf der Basis sowohl von RPu wie von WPu untersucht. Dazu werden umfangreiche Zell-Abbrandrechnungen zur Bestimmung der abbrandabhängigen Reaktivität durchgeführt. Dabei werden insbesondere Aussagen zur Abhängigkeit des Entladeabbrands von der anfänglichen Plutoniumkonzentration und der sich ergebenden mittleren Anfangsreaktivität solcher Brennstoffe gewonnen.

In Kapitel 8 werden kurz wichtige Grundlagen der Reaktivitätskontrolle in LWR diskutiert. Dabei stellt die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit (*boron worth coefficient*, BWC) einen wesentlichen Parameter für die Möglichkeit einer Reaktivitätskontrolle in existierenden LWR dar. Für MOX und IMF wird daher die Abbrandabhängigkeit des BWC untersucht und die Notwendigkeit der Verwendung von brennbaren Neutronengiften (*burnable poisons*, BP) bei IMF motiviert. Daran anschließend werden in Kapitel 9 verschiedene mögliche BP diskutiert und die für IMF unter Verwendung von vier BP-Kandidaten (B, Eu, Er, Gd) durchgeführten Zell-Abbrandrechnungen dargestellt. Für zwei als besonders geeignet identifizierte BP wird dann die Abhängigkeit von der verwendeten BP-Konzentration genauer untersucht. Damit wird schließlich die Identifikation von Referenzbrennstoffen zu vorgegebenen Zielabbränden möglich, welche für eine genauere Analyse vorgesehen werden.

Für diese Referenzbrennstoffe werden in Kapitel 10 schließlich die wichtigsten Indikatoren für eine Bewertung der Brennstoffe ausführlich diskutiert. So sind insbesondere Aussagen zur maximal möglichen Pu-Reduktion und zur Qualität der verbleibenden Plutoniummenge möglich. Die wesentlichen im Verlauf dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse werden in Kapitel 11 zusammengefasst.

Kapitel 2

Die Plutonium-Situation heute: Bestände und Beseitigungsoptionen

Erst durch Aktivitäten des Menschen wurde das Element Plutonium in signifikanten Mengen auf der Erde produziert. Das natürliche Vorkommen ist vernachlässigbar klein, es kann mit weltweit etwa 10 kg in Uranerzlagerstätten abgeschätzt werden (Koelzer, 1989). 1941 wurde Plutonium erstmals in kernphysikalischen Experimenten isoliert (Seaborg et al., 1946). Gleichzeitig wurde erkannt, dass insbesondere das Isotop Pu-239 als spaltbares Material in Kernwaffen eingesetzt werden könnte. So begann im Herbst 1944 die Produktion von Plutonium in den ersten Kernreaktoren im Rahmen des U.S.-amerikanischen Manhattan-Projektes. Bei der am 16. Juli 1945 in der Wüste von New Mexiko getesteten ersten Kernwaffe handelte es sich um eine Plutonium-Bombe. Eine auf Plutonium basierende Waffe wurde dann erstmalig am 9. August 1945 gegen die japanische Stadt Nagasaki eingesetzt.

In der Zeit des „Kalten Krieges“ begann die Produktion von größeren Mengen an Plutonium für militärische Zwecke, die eine ganze Reihe von Staaten in den Stand setzte, Kernwaffenarsenale aufzubauen. In den fünf offiziellen Kernwaffenstaaten¹ sind ca. 260 t Plutonium für Waffenzwecke produziert worden (siehe unten).

Parallel zur Plutonium-Produktion in Reaktoren des Militärs begann mit der in den fünfziger und sechziger Jahren einsetzenden zivilen Nutzung der Kernenergie auch dort die Produktion von größeren Mengen an Plutonium, zunächst in Forschungsreaktoren und dann in wirtschaftlich genutzten Leistungsreaktoren. Plutonium fällt gewissermaßen als „Nebenprodukt“ in den Reaktoren, d. h. bei der Bestrahlung von Uran-Brennstoff, an.

Obwohl dieses Plutonium, das zunächst in abgebrannte Brennelemente eingebettet ist, nicht unmittelbar als Brennstoff zur Energiegewinnung genutzt werden konnte, war denkbar, dass eine langfristig ausgerichtete Nutzung der Kernenergie dieses Plutonium verwenden würde, um so dem erwarteten Mangel an spaltbarem Uran entgegenzuwirken. Dies führte insbesondere zum Konzept und zur Entwicklung von sogenannten Brutreaktoren,

¹Offizielle Kernwaffenstaaten im Sinne des nuklearen Nichtverbreitungsvertrages (NVV) sind die USA, Russland, Großbritannien, Frankreich und China.

die wenigstens genauso viel Spaltstoff (Plutonium) erzeugen sollten, wie beim Betrieb des Reaktors selbst verbraucht wird. Als wichtige Komponente dieser Strategie wurde auch die chemische Technologie zur Abtrennung des Plutoniums aus abgebranntem Uran-Brennstoff, also die sog. Wiederaufarbeitung, basierend auf der im militärischen Bereich vorhandenen Technologie auf ziviler Ebene in einigen Ländern entwickelt und etabliert. Keines der aufwendigen Brüterprojekte hat allerdings bislang zu einem Konzept geführt, das sowohl technisch ausgereift als auch sicherheitstechnisch und wirtschaftlich attraktiv wäre. Dennoch setzte die Entsorgungspolitik in einigen Ländern mit größeren Kernenergieprogrammen auf die Plutoniumabtrennung und -wiederverwertung. So werden weltweit heute bereits über 200 t abgetrenntes Plutonium im zivilen Bereich gelagert. Die Tendenz ist noch immer steigend.

Zu Beginn der Kernenergienutzung wurde Plutonium also — sowohl aus militärischer als auch aus ziviler Sicht — als Wertstoff angesehen. Daher stand bis in die achtziger Jahre hinein die Erzeugung von Plutonium im Zentrum des Interesses. Bereits in den siebziger und achtziger Jahren wurden jedoch die mit dem Anwachsen der Bestände separierten Plutoniums verbundenen Proliferationsgefahren thematisiert (American Physical Society, 1978; International Atomic Energy Agency, 1980). Mit Beginn der neunziger Jahre kam es dann — zunächst im militärischen Bereich — zu einer neuen Fragestellung: die Umsetzung von Schritten zur nuklearen Abrüstung führte zu der Frage, wie Plutonium, das aus abgerüsteten Sprengköpfen frei wird, dauerhaft dem erneuten Zugriff entzogen werden könnte. Damit rückte nun die Frage des Abbaus vorhandener Bestände in den Mittelpunkt des Interesses.² Die Frage nach dem Umgang mit vorliegenden Plutonium-Beständen kann jedoch auch auf zivile Bestände erweitert werden, hier stieg die gelagerte Menge in den letzten Jahren kontinuierlich an, so dass über neue Ansätze zur Beseitigung nachgedacht werden muss.

2.1 Weltweit vorliegende Bestände von Plutonium in abgetrennter Form

Plutonium entsteht im wesentlichen in Kernreaktoren durch Neutroneneinfang und zwei anschließende radioaktive Zerfälle aus U-238, dem Hauptbestandteil des üblichen Reaktorbrennstoffs.³ Dabei wird zunächst das Plutoniumisotop Pu-239 gebildet. Aus diesem entstehen durch sukzessive Neutroneneinfänge weitere Plutoniumisotope (Pu-238, Pu-240, Pu-241, Pu-242) und hieraus nach weiteren Umwandlungsprozessen Americium- und Curiumisotope. Das entstandene Plutonium ist dabei zunächst in stark strahlende abgebrannte Brennelemente eingebettet und muss vor einer Verwendung für Kernwaffen oder als Brennstoff im zivilen Bereich durch die Technik der chemischen Wiederaufarbeitung aus dem Brennstoff abgetrennt werden.

²Siehe bspw. Deutsche Physikalische Gesellschaft, AKE und AKA (2000).

³In kleinen Mengen kann Plutonium auch mit Hilfe von Beschleunigern durch Kernreaktionen erzeugt werden.

2.1.1 Typische Plutoniumzusammensetzungen

Die Isotopenzusammensetzung von Plutonium hängt einerseits stark von der Dauer der Bestrahlung des Uran-Brennstoffs ab, in welchem das Plutonium erzeugt wurde, andererseits verändert sie sich in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der Abtrennung des Plutoniums aus dem abgebrannten Brennstoff und dem Alter des Plutoniums nach Abtrennung aufgrund des relativ schnellen Zerfalls der Isotope Pu-238 und Pu-241. Die Zusammensetzung von vorliegenden zivilen Beständen kann daher stark variieren. Auch für Plutonium aus militärischen Beständen kann keine genaue Zusammensetzung angegeben werden. So unterliegt diese z. B. in Russland weiterhin der Geheimhaltung. Typische Werte finden sich jedoch bspw. in Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (1995).⁴ Im Rahmen dieser Arbeit wird einheitlich mit den in Tabelle 2.1 angegebenen Zusammensetzungen für zivile Bestände (sogenanntes „Reaktorplutonium“, RPu) und militärisches Plutonium („Waffenplutonium“, WPu) gerechnet, sofern nicht explizit von anderen Werten ausgegangen werden soll.⁵

	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	
WPu	0,05	93,60	6,00	0,30	0,05	%
typisches RPu	1,80	59,00	23,00	12,20	4,00	%

Tabelle 2.1: Isotopenzusammensetzung in Prozent (%)⁶ von waffengrädigem Plutonium („Waffenplutonium“, WPu) und Plutonium aus kommerziellem Leichtwasserreaktor-Brennstoff bei einem Abbrand von 33 MWd/kg(HM)⁷(„Reaktorplutonium“, RPu) gemäß OECD/NEA (1995a).

⁴Hier werden Werte von 0,01% Pu-238, 93,82% Pu-239, 5,80% Pu-240, 0,13% Pu-241, 0,02% Pu-242 sowie 0,22% Am-241 als typisch für die Zusammensetzung von U.S.-amerikanischem WPu angegeben.

⁵Da auch sogenanntes Reaktorplutonium prinzipiell für Kernwaffen verwendet werden kann, bietet sich eigentlich die im englischsprachigen Raum vorgenommene Unterscheidung von „reactor-grade“ und „weapons-grade“ Plutonium an, da sie stärker deutlich macht, dass es sich dabei lediglich um einen Unterschied in der Zusammensetzung, nicht jedoch der prinzipiellen Verwendbarkeit handelt. Im Rahmen dieser Arbeit sind die Abkürzungen RPu und WPu im Sinne der in Tabelle 2.1 gemachten Definition zu verstehen.

⁶Bei allen im Rahmen dieser Arbeit gemachten Angaben zu Materialzusammensetzungen beziehen sich Prozentangaben — sofern nicht explizit anders angegeben — immer auf Gewichtsanteile.

⁷Die Abkürzung HM steht für „heavy metal“ und bezeichnet den Anteil des Schwermetalls im Brennstoff.

2.1.2 Abschätzung der vorliegenden Bestände

Eine genaue Angabe der weltweit vorliegenden Bestände von Plutonium ist heute nicht möglich. Es liegen jedoch verschiedene offizielle Angaben sowie Abschätzungen zu realen Beständen vor, wobei die Genauigkeit der entsprechenden Aussagen je nach Land stark schwanken kann. Dennoch soll hier versucht werden, einen Überblick über die gegenwärtigen Bestände von Plutonium — sowohl im militärischen wie im zivilen Bereich — zu vermitteln.

Über militärische Bestände von Plutonium liegen heute von zwei der fünf offiziellen Kernwaffenstaaten detaillierte offizielle Angaben vor. Die USA haben im Jahr 1996 eine erste ausführlichere Bilanz ihrer militärischen Plutonium-Bestände veröffentlicht (U.S. Department of Energy, 1996). Demnach liegen in den USA 99,5 t Plutonium in abgetrennter Form vor. Bereits bei dieser Aufstellung ist für den Zeitraum von 1945–1995 eine Inventardifferenz von 2,8 t festgestellt worden, deren Verbleib nicht geklärt werden konnte (dies entspricht immerhin 2,8% des gegenwärtigen Inventars). Auch Großbritannien hat mittlerweile eine Bilanz seiner militärischen Bestände veröffentlicht (United Kingdom Ministry of Defence, 1998), danach liegen hier 7,6 t Plutonium im militärischen Bereich vor. Weder die übrigen offiziellen Kernwaffenstaaten (Russland, China und Frankreich), noch weitere — de facto oder möglicherweise — über Kernwaffen verfügende Staaten (Israel, Indien, Pakistan, Nord-Korea) haben bislang genauere Zahlen über militärische Bestände veröffentlicht. Eine möglichst genaue Bestimmung dieser Bestände wurde von Albright et al. (1997) vorgenommen. Eine aktualisierte Fassung dieser Zahlen wurde ebenfalls erstellt (Institute for Science and International Security (ISIS), 2004). Danach liegen mit Stand Ende 2002 im militärischen Bereich weltweit ca. 260 Tonnen Plutonium vor (siehe Tabelle 2.2). Eine weitere Produktion von militärischem Plutonium findet nach Angaben der offiziellen Kernwaffenstaaten zur Zeit nicht statt, so dass diese Menge gegenwärtig nahezu konstant bleibt.⁸

Von diesen militärischen Beständen haben die USA, Russland und Großbritannien insgesamt 107 t zu Überschuss über die gegenwärtig benötigten Mengen erklärt. Dieser Überschuss ist bislang zu einem geringen Teil unter internationale Kontrolle gestellt worden. Über die Beseitigung von 68 t aus diesen überschüssigen Beständen wurde zwischen den USA und Russland ein Abkommen zur Beseitigung dieses Plutonium bis 2030 unterzeichnet (U.S./Russia, 2000).

Bezüglich ihrer im zivilen Bereich vorliegenden Plutonium-Bestände haben neun Plutonium nutzende Länder 1997/1998 verabredet, in einem jährlichen Bericht eine Zusammenfassung zu vorliegenden Beständen zu veröffentlichen (International Atomic Energy Agency, 1998). Für diese Länder können daher einigermaßen verlässliche Angaben zu den Gesamtmengen gemacht werden. Der Stand Ende 2002 ist in Tabelle 2.2 zusammengefasst. Große Mengen liegen in den drei Kernwaffenstaaten Frankreich, Großbritannien und Russland vor. Lediglich Frankreich verfolgt dabei zur Zeit die quantitative Umsetzung

⁸In Russland waren Anfang 2005 noch drei Plutonium-Produktionsreaktoren in Betrieb, die zur regionalen Energieversorgung benötigt werden. Pläne für eine Abschaltung dieser Reaktoren werden jedoch aktiv verfolgt (Nartker, 2005).

2.1. Weltweit vorliegende Bestände von Plutonium in abgetrennter Form

Land	Zivile Bestände	Militärische Bestände	
		Gesamt	Davon Überschuss
Offizielle Kernwaffenstaaten			
China		4,8	
Frankreich	47,9	5	
Großbritannien	66,4	7,6	4,4
Russland	37,8	145	50
USA		99,5	52,5
De facto oder mögliche Kernwaffenstaaten			
Indien	1,0	0,36	
Israel		0,56	
Nord-Korea ⁹		0,03–0,04	
Pakistan		0,04	
Staaten mit offiziellen zivilen Beständen			
Belgien	1,8		
Deutschland	25,6		
Italien	2,4		
Japan	38,6		
Niederlande	2,1		
Schweden	0,83		
Schweiz	2,0		
Spanien	0,5		
Gesamt (gerundet)	227	263	107

Tabelle 2.2: Bestände von in abgetrennter Form vorliegendem Plutonium in Tonnen gemäß Institute for Science and International Security (ISIS) (2004) und International Atomic Energy Agency (1998). Stand Ende 2002.

von abgetrenntem Plutonium in der Form von MOX-Brennstoff in Leichtwasserreaktoren (siehe unten). Unter den Nicht-Kernwaffenstaaten weisen insbesondere Deutschland und Japan sehr hohe Bestände in ihrer Verantwortung auf. In Deutschland ist die weitere Verbringung von abgebranntem Brennstoff zur Wiederaufarbeitung ab 1.7.2005 nach dem Atomgesetz verboten. Für alles zur Abtrennung vorgesehene Plutonium muss von den Betreibern nachgewiesen werden, dass eine Rückführung des Plutoniums als MOX in deutschen Reaktoren im Rahmen der verbleibenden Restlaufzeiten gewährleistet ist. Japan hat mit Stand Januar 2005 noch keinen MOX-Brennstoff in Leichtwasserreaktoren eingesetzt.

In der Summe wird deutlich, dass im zivilen Bereich bereits heute eine vergleichbare

⁹So hat Nord-Korea im Februar 2005 erklärt, über Kernwaffen zu verfügen. Die für Nord-Korea gemachten Angaben beziehen sich dabei auf im Land vorliegende Pu-Mengen, die möglicherweise bereits abgetrennt wurden. Auch hierüber liegen jedoch keine zuverlässigen Angaben vor.

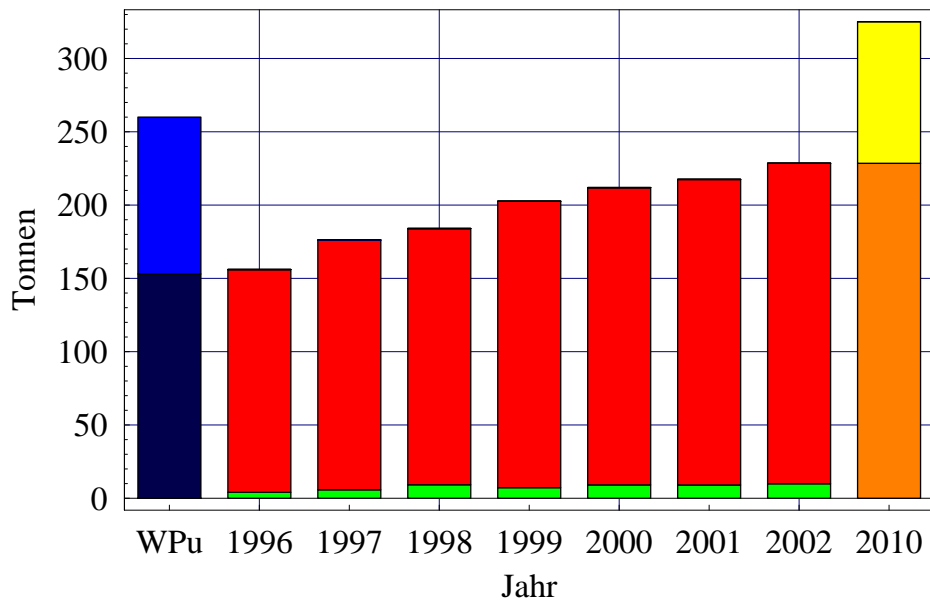


Abbildung 2.1: Weltweite Bestände an in abgetrennter Form vorliegendem Plutonium. In Blau sind die Bestände an vorliegendem WPU dargestellt, die auf ca. 260 t geschätzt werden (Institute for Science and International Security (ISIS), 2004). Davon wurden 107 t zu Überschuss über die militärischen Bestände erklärt (hellblau). Rot sind die im zivilen Bereich vorliegenden Bestände für die Jahre 1996–2002 dargestellt, die Zahlen beruhen auf staatlichen Angaben gemäß International Atomic Energy Agency (1998). Schätzung 2010: Stabilisierung auf heutigem Niveau (Orange), oder Anwachsen wie im Mittel der Jahre 1996–2002 (gelb). In grün ist schließlich die im jeweiligen Jahr in der Form von MOX-Brennstoff umgesetzte Plutoniummenge dargestellt. Im Mittel wurden zwischen 1996 und 2002 7,76 t pro Jahr verwendet, in 2003 waren es 12,12 t (Euratom Supply Agency (ESA), 2004).

Menge an abgetrenntem Plutonium gelagert wird wie im militärischen Bereich. Wie Abbildung 2.1 deutlich macht, stieg darüber hinaus im zivilen Bereich die vorliegende Menge an Plutonium in den letzten Jahren kontinuierlich an. Im Zeitraum von 1996–2002 stiegen die vorliegenden Bestände im Mittel um 12,1 t pro Jahr an. Zeitgleich wurden im Mittel 7,76 t Plutonium in der Form vom MOX-Brennstoff in Reaktoren eingesetzt. Würde sich der mittlere Anstieg bis 2010 nicht ändern, so lägen zu diesem Zeitpunkt bereits ca. 330 t abgetrenntes Plutonium vor. Weitere ca. 1400 Tonnen sind gemäß Institute for Science and International Security (ISIS) (2004) weltweit noch in abgebranntem Brennstoff eingebettet.

Einen Überblick über vorhandene und geplante Wiederaufarbeitungsanlagen gibt bspw. die International Atomic Energy Agency (2003b, S. 9f). Danach existieren gegenwärtig in den OECD-Staaten Anlagen zur Wiederaufarbeitung mit einer Kapazität von ca. 3400 t(HM)/a. Weitere Anlagen mit einer Gesamtkapazität von ca. 620 t(HM)/a werden in Russland und Indien betrieben. Ein weiterer Ausbau von Wiederaufarbeitungskapazitäten ist in Indien, Japan und Russland vorgesehen, auch China plant die Errichtung

ziviler Anlagen im Verlauf des nächsten Jahrzehnts. Demgegenüber ist in Großbritannien die Stilllegung einer Anlage mit einer Kapazität von 1500 t(HM)/a für 2012 geplant. Eine Abschätzung der gesamten Wiederaufarbeitungskapazität nach dem Jahr 2015 beläuft sich auf etwa 6000 t(HM)/a. Bei einem durchschnittlichen Plutoniumgehalt im abgebrannten Brennstoff von 0,7–1% ergäbe sich dann ein maximaler jährlicher Anfall von 42–60 t abgetrenntem Plutonium.

2.2 Anlagen zum Umgang mit Plutonium-Beständen

Die einzige heute großtechnisch umgesetzte Option zum Abbau von Plutonium-Beständen besteht in der Verarbeitung von Plutonium zu Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoff (MOX) und anschließendem Einsatz dieses Brennstoffs in Reaktoren. Dabei wird kommerziell heute nur MOX-Brennstoff für den Einsatz in Leichtwasserreaktoren hergestellt. Die folgenden Abschnitte fassen einige wesentliche Angaben über Anlagen zur MOX-Fertigung und von Reaktoren, die für den Einsatz von MOX-Brennstoffen lizenziert sind, zusammen.

2.2.1 Fabrikationsanlagen für MOX-Brennstoffe

Einen Überblick über die Anfang 2004 weltweit existierenden kommerziellen Anlagen zur MOX-Fertigung gibt Tabelle 2.3. Größere Anlagen existieren zur Zeit in Frankreich, Belgien und Großbritannien. Nach Betrieb einer kleineren Anlage ist die in Deutschland 1991 praktisch fertig gestellte Brennelementfabrik der Firma Siemens in Hanau nicht in Betrieb gegangen. Japan plant die Errichtung einer großen Anlage, die 2009 in Betrieb gehen soll. Auch im Rahmen der Entsorgung von WPu-Beständen ist sowohl in den USA als auch in Russland die Errichtung neuer Anlagen zur MOX-Produktion vorgesehen, deren Kapazität zur Beseitigung von 34 t Plutonium bis 2030 ausreichen soll.¹⁰ Insgesamt standen damit Anfang 2004 Anlagen mit einer Verarbeitungskapazität von ca. 10–14 t Plutonium pro Jahr zur Verfügung. Mit der vollständigen Inbetriebnahme der britischen Anlage SMP würde sich dieser Wert auf 16–23 t/a erhöhen, eine weitere Steigerung dieses Potentials ist dann jedoch erst wieder gegen Ende des Jahrzehnts bei einer Inbetriebnahme der geplanten japanischen Anlage oder der Anlagen in den USA und Russland zu erwarten.

2.2.2 Für MOX-Nutzung lizenzierte Reaktoren

In Tabelle 2.4 ist der Stand der MOX-Nutzung bis Ende 2000 zusammengefasst (International Atomic Energy Agency, 2003b). Danach verfügten zu diesem Zeitpunkt 42 Reaktoren über eine Lizenz zum Einsatz von MOX-Brennelementen. Typischerweise ist eine

¹⁰Die in den USA geplante Anlage soll eine Kapazität zur Verarbeitung von maximal 3,5 t/a Plutonium aufweisen (U.S. Nuclear Regulatory Commission, 2005).

maximale Belegung von einem Drittel des Reaktorkerns mit MOX-Brennelementen vorgesehen, einzelne Reaktoren weisen jedoch sogar Lizenzen für einen Einsatz von 50% MOX-Brennelementen im Kern auf. Auch der maximal zugelassene Anteil an Plutonium im MOX-Brennstoff ist beschränkt, typische Werte liegen zwischen 3% und 5% der thermisch spaltbaren Pu-Isotope (Pu-fis) im Brennstoff.¹¹ Insgesamt wurden 2775 MOX-Brennelemente bis Ende 2000 in Leichtwasserreaktoren eingesetzt.

Bis Ende 1998 wurden ca. 1100 t(HM) MOX-Brennstoff für LWR hergestellt, die ca. 53 t Plutonium enthielten, weitere ca. 150 t(HM) mit einem Gehalt von ca. 32 t Plutonium wurden für den Einsatz in schnellen Reaktoren produziert (Bairiot et al., 2000).

In Deutschland wurde seit 1965 MOX-Brennstoff hergestellt. Etwa 8,5 t Plutonium wurden dabei in den Jahren 1972 bis 1992 in Deutschland zu MOX verarbeitet, der größte Teil zu LWR-Brennstoff (Gehalt 5,7 t Pu). Danach hat es keine MOX-Produktion mehr in Deutschland gegeben. Ein erster Einsatz von MOX-Brennstoff erfolgte in Deutschland 1966 im VAK-Reaktor in Kahl, der erste Einsatz von MOX-Brennstoffen in einem kommerziellen Reaktor erfolgte 1972 im Kernkraftwerk Obrigheim. Bis Ende 2000 wurden seitdem 1031 MOX-Brennelemente in deutschen Kernkraftwerken eingesetzt. Bis Ende 1998 wurde ein maximaler Abbrand von 50 MWd/kg(HM) erreicht, der mittlere Abbrand betrug ca. 40 MWd/kg(HM) (Etmuss und Bröskamp, 2000).

Die Verwendung von MOX-Brennstoff in schnellen Reaktoren spielt heute weltweit nur eine sehr geringe Rolle, da bislang ausschließlich nicht-kommerzielle Reaktoren in Betrieb sind.

¹¹Die mit thermischen Neutronen spaltbaren Isotope des Plutoniums sind Pu-239 und Pu-241.

Land	Anlage	Betreiber	Typ	Betriebsbeginn (–Stilllegung)	Designkapazität [t(HM)/a]
Belgien	P0 (Dessel)	Belgonucleaire SA	LWR	1973	40
Deutschland	ALKEM (Karlsruhe)	FZK		1965–1972	8
	Siemens Demo (Hanau)	Siemens AG	LWR	1963–1992	30
	Siemens (Hanau)	Siemens AG	LWR		120
Frankreich	CFCa (Cadarache)	COGEMA	LWR/FBR	1961–2003	40
	Melox (Marcoule)	COGEMA	LWR	1995	145
Großbritannien	MDF (Sellafield)	BNFL	LWR	1992–2000	8
	FBR MOX (Sellafield)	BNFL	FBR	1970–1988	6
	SMP (Sellafield)	BNFL	LWR		120
Indien	Advanced Fuel Fabrication Facility (Tarapur)	Department of Atomic Energy (DAE)		1993	50
Italien	Plutonium-Labor (Casaccia)	ENEA		1968–1987	0,9
Japan	PFDF-MOX (Tokaimura)	JNC		1965	0,3
	PFFF-ATR (Tokaimura)	JNC		1972–2004	10
	PFFF-FBR (Tokaimura)	JNC	FBR	1972–1988	1
	PFPF-FBR (Tokaimura)	JNC	FBR	1988	5
	Takeyama (Takeyama)	Nuclear Fuel Industries Ltd		1972–1973	10
	Rokkasho (Rokkashomura)	JNFL		2009	130
Russland	Mayak	Mayak Production	FBR	1980	0,5
	(Chelyabinsk)	Association	FBR	1980	0,5
	RIAR	V I Lenin Research	FBR	1975	1
	(Dimitrovgrad)	Institute of Nuclear Reactors	FBR	1975	1

Tabelle 2.3: Kommerzielle Anlagen zur Fertigung von MOX-Brennstoff weltweit, Stand Februar 2004. Weitere Anlagen im Labormaßstab existieren in Kanada und den USA. Alle Angaben gemäß International Atomic Energy Agency (2003a).

Land	Reaktor-Typ	Reaktoren mit MOX-Lizenz	Erster MOX-Einsatz	Max. MOX-Anteil [%]	Max. Pu-tot (Pu-fis) in MOX [%]	Gesamt Brennelemente seit 1960	Maximaler Abbrand [MWd/kg(HM)]
Belgien	DWR	2	1995	24	7,5 (4,9)	96	45
Deutschland	DWR	9	1972	50	6,9 (4,6)	646	49
	SWR	2	1966	38	5,4 (3,6)	385	51
Frankreich	DWR	20	1987	31	6,7 (4,5)	1480	51
Indien	SWR	2					
Japan	DWR	2		25	≡ 4,1% U-235		
	SWR	2		44	≡ 3,0% U-235		
Schweiz	DWR	3	1978	40	7,3 (4,8)	168	54

Tabelle 2.4: Reaktorkapazitäten für MOX-Brennstoffe weltweit sowie bisheriger Einsatz, Stand Ende 2000 gemäß International Atomic Energy Agency (2003b, Tabellen V, VII und XIII).

2.3 Zivil-militrische Ambivalenz von Plutonium

Die Weiterverbreitung von Kernwaffen stellt eine kontinuierliche Gefhrdung fr die internationale Sicherheit und den Weltfrieden dar. Proliferationsgefahren (Gefahren der Weiterverbreitung von Kernwaffen), die mit vorhandenen Bestnden an abgetrenntem Plutonium verbunden sind, werden international diskutiert (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994; Takagi et al., 1997; Carter und Pigford, 1999). Da die technologischen Hrden zur Konstruktion einer Kernwaffe beim heutigen Stand von Forschung und Technik als vergleichsweise gering einzuschtzen sind, kommt der Verhinderung des Zugriffs auf kernwaffenfhiges Material bei den Bemhungen um die Nichtverbreitung von Kernwaffen eine zentrale Rolle zu. Als geeignete Materialien gelten insbesondere hochangereichertes Uran und Plutonium, die beide in den Waffenprogrammen der Kernwaffenstaaten Verwendung finden.¹² Hierbei ist die Wiederaufarbeitung abgebrannten Brennstoffs die grote technologische Hrde beim Zugriff auf Plutonium (Liebert, 1997). Die berwachung des Umgangs mit waffenfhigem Spaltmaterial ist zentrales Element des nuklearen Nichtverbreitungsvertrages (NVV). Darber hinausgehend knnten Manahmen ergriffen werden, die die Mglichkeiten des Zugriffs auf spaltbare Materialien prinzipiell erschweren.

Alle etablierten Kernwaffenstaaten verwenden Plutonium als wichtiges spaltbares Material in ihren Kernwaffenarsenalen. Israel und Indien haben ihre Kernwaffenfhigkeit ber den Aufbau von Produktionskapazitten fr Plutonium erreicht. Andere Staaten wurden oder werden verdchtigt, ber den Zugriff auf Plutonium eine Waffenkapazitt aufbauen zu wollen, beispielsweise aktuell Nord-Korea, frher Irak und Brasilien, aber in den sechziger und siebziger Jahren auch einige westeuropische Staaten (Spector et al., 1995). Auch Pakistan, welches bislang ausschlielich hochangereichertes Uran in seinen Kernwaffen verwendete, versucht zur Zeit durch eine Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennstoffen aus einem nicht unter Sicherungsmanahmen (Safeguards) stehenden Schwerwasserreaktor Zugriff auf Plutonium zu erlangen (Mark Hibbs, 2000).

Aus der Perspektive einer prventiven Rstungskontrolle gilt es, rechtzeitig Manahmen fr eine effektive Nichtverbreitungspolitik zu ergreifen (Forschungsverbund Naturwissenschaften, Abrstung und internationale Sicherheit (FONAS), 2001). Ein Ziel muss dabei sein, die Verwendung von Plutonium fr Kernwaffenzwecke so sicher wie mglich auszuschlieen. Damit lsst sich das internationale Regime zur Nichtverbreitung von Kernwaffen (NVV-Regime) als ein Standbein prventiver Rstungskontrolle verstehen. Im Rahmen des NVV-Regimes soll der Zugriff auf Plutonium mglichst erschwert werden. Durch politisch-institutionelle Manahmen wird versucht, den *Anreiz* fr einen solchen Zugriff zu senken bzw. durch die Gefahr einer rechtzeitigen Entdeckung von auen die mit ihm verbundenen (politischen) Nachteile soweit zu erhhen, dass ein solcher Versuch nicht unternommen wird.

¹²Auch das Wasserstoff-Isotop Tritium spielt als Neutronenvervielfltiger bei fortgeschrittenen Waffensystemen eine groe Rolle, ist jedoch ohne Uran oder Plutonium nicht fr den Bau einer Kernwaffe ausreichend. Neben Uran und Plutonium knnten prinzipiell auch andere Aktinide als Spaltmaterial verwendet werden. ber einen derartigen Einsatz ist jedoch bislang ffentlich nichts bekannt.

Als weiterer wesentlicher Aspekt kann jedoch durch technisch-intrinsische Maßnahmen sichergestellt werden, dass die *Möglichkeit* bzw. Gelegenheit für einen solchen unerwünschten Zugriff selbst eingeschränkt wird. Gleichzeitig kann die Entdeckungswahrscheinlichkeit bei einem doch vorgenommenen Versuch erhöht sowie die Rechtzeitigkeit einer Entdeckung sichergestellt werden. Während institutionelle Maßnahmen weitestgehend auf einer aktiven Überwachung bzw. Kontrolle der Nichtabzweigung von Plutonium durch staatliche Stellen beruhen, soll durch technisch-intrinsische Maßnahmen der Zugriff auf Plutonium durch wirkungsvolle Barrieren erheblich erschwert werden, die unabhängig von aktiven Maßnahmen wirksam sind. Hierzu kann bspw. das Erzeugen einer radioaktiven Barriere zum Schutz vor einem direkten Zugriff dienen (U.S. Department of Energy, Office of Fissile Materials Disposition, 1995).

Es kann also zwischen institutionellen und intrinsischen Maßnahmen zur Reduzierung von Proliferationsgefahren unterschieden werden. Dabei wird im Rahmen dieser Arbeit unter institutionellen Maßnahmen derjenige Anteil an der Überwachung einer Nichtabzweigung von Plutonium verstanden, der auf aktive politisch-institutionelle Verfahren (z. B. Inspektionen, Buchführung über Bestände spaltbarer Materialien, Videoüberwachung von Anlagen etc.) beruht. Unter intrinsischen Maßnahmen sollen demgegenüber technisch-physikalische Maßnahmen (z. B. geeignete technische Auslegung von Anlagen, Beeinflussung der physikalischen und chemischen Form, in der spaltbare Materialien vorliegen etc.) verstanden werden, die die Wirksamkeit von institutionellen Maßnahmen erheblich erhöhen bzw. zumindest wirkungsvoll unterstützen können.

Gegenüber den rein institutionellen Maßnahmen spielt bereits seit den siebziger Jahren das Konzept der Proliferationsresistenz in der Diskussion um eine sinnvolle und nachhaltige Vermeidung von Proliferationsgefahren eine wichtige Rolle (Liner et al., 1977; Feiveson, 1978). Durch eine entsprechende Auslegung von Anlagen und Verfahren im kerntechnischen Bereich soll eine größtmögliche Reduktion von Proliferationsrisiken herbeigeführt werden. Ein solcher Ansatz hat auch Bedeutung für Strategien zum Umgang mit Plutonium-Beständen in abgetrennter Form sowie für die Auslegung von Technologien bzw. Anlagen, welche zum Abbau vorliegender Bestände Verwendung finden könnten.

Im Rahmen einer internationalen Untersuchung des Brennstoffkreislaufs im Rahmen der Vereinten Nationen in den Jahren von 1978–1980 (International Nuclear Fuel Cycle Evaluation, INFCE) wurde der Einfluss der Wiederaufarbeitung und anschließenden Plutoniumnutzung in Leichtwasserreaktoren auf die Proliferationsresistenz der Kernenergienutzung analysiert. Auch wenn aus damaliger Sicht eine eindeutige Beurteilung aufgrund der unterschiedlichen Einschätzungen verschiedener Staaten bezüglich der weiteren Entwicklung der Kernenergienutzung und der damit verbundenen Rolle der Plutoniumnutzung nicht möglich war, wurden dennoch Ansätze für eine Reduktion der mit einer Nutzung von Plutonium verbundenen Proliferationsgefahren formuliert. Dabei lassen sich die technischen Maßnahmen im wesentlichen auf drei Kategorien beziehen (International Atomic Energy Agency, 1980, S. 151):

- Maßnahmen zur Reduzierung des in abgetrennter Form im Brennstoffkreislauf vorliegenden Plutoniums,

- Nutzung radioaktiver Stoffe zum Erschweren einer Abzweigung von Plutonium und
- Schutzmaßnahmen durch physische Barrieren (Diebstahlschutz).

Bis heute spielt insbesondere der dritte Ansatz eine wesentliche Rolle. Entgegen den Empfehlungen der INFCE-Konferenz kam es in den beiden letzten Jahrzehnten jedoch zu einem massiven Anstieg des im zivilen Bereich in abgetrennter Form vorliegenden Plutoniums.

Da internationale Sicherungsmaßnahmen bestenfalls sicherstellen können, dass ein undeklariertem Zugriff auf Plutonium nachträglich mit hoher Wahrscheinlichkeit entdeckt werden kann, diesen jedoch in aller Regel nicht sicher verhindern können, sollten solche Maßnahmen durch intrinsische Maßnahmen ergänzt werden. Intrinsische Maßnahmen sollten direkt bei den Materialien bzw. verwendeten Technologien selbst ansetzen. Das Ziel ist

- die direkte Verwendbarkeit von existierendem Plutonium für Kernwaffen soweit irgend möglich auszuschließen und
- Hürden gegen den Zugriff auf Plutonium zu errichten, die nicht alleine auf von Menschen durchgeführten „Sicherungsmaßnahmen“ beruhen, sondern die vorliegende materielle Form des Plutoniums betreffen, also intrinsisch wirken.

Dies kann insbesondere bedeuten, das Plutonium in einen Zustand zu überführen, in dem eine Verwendung für Kernwaffenzwecke möglichst weitgehend erschwert ist. Hierzu kann primär eine Strahlungsbarriere dienen, wie sie bspw. in abgebranntem Brennstoff durch die Existenz der hochradioaktiven Spaltprodukte vorliegt. Weitere Maßnahmen, die den Zugriff auf Plutonium erschweren bzw. den notwendigen Zeitrahmen und technischen Aufwand zur Vorbereitung von Plutonium für eine waffentechnische Verwendung erhöhen würden, wären z. B. eine Änderung der chemischen Form, eine Mischung mit Neutronenabsorbern oder auch eine Einbettung in große und schwere Gebinde, welche dann direkt einer späteren Endlagerung zugeführt werden können. In Kombination mit institutionellen Maßnahmen könnte somit das Proliferationsrisiko deutlich vermindert werden, insbesondere wäre auch eine Abzweigung für Waffenzwecke durch die Staaten, in deren Besitz sich das Plutonium befindet, erschwert (siehe hierzu auch ausführlicher Kapitel 3.5).

2.4 Diskutierte Ansätze zum Abbau vorliegender Plutonium-Bestände

Im Zusammenhang mit der Frage nach Optionen für den Umgang mit Plutonium-Beständen aus dem militärischen Bereich erstellte die U.S. National Academy of Sciences zwei Studien (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994, 1995), in denen alle wesentlichen Optionen vergleichend untersucht wurden. Weitere Studien wurden z. B. in amerikanisch-deutscher Kooperation herausgegeben (German-American Academic Council und National Academy of Sciences, 1995). Eine aktuellere

Zusammenfassung findet sich bspw. in Pistner und Liebert (2001). Auch für die im zivilen Bereich vorliegenden Plutoniummengen werden unterschiedliche Optionen der Beseitigung diskutiert (Forschungszentrum Jülich, 2000; Liebert, Pistner und Glaser, 2000; Liebert und Pistner, 2001a; Barleon et al., 2004).

Die Optionen zum zukünftigen Umgang mit militärischem wie zivilem Plutonium lassen sich prinzipiell in drei Kategorien einteilen, wobei das angestrebte Ziel im Vordergrund steht.

So wäre erstens eine zeitlich unbegrenzte, langfristige Lagerung denkbar. Diese hätte dann unter hohen Sicherheitsstandards statt zu finden, welche etwa mit dem Standard bei der Lagerung von Kernwaffen (*Stored Weapon Standard*, SWS) übereinstimmen müsste. Hierbei wäre eine Lagerung von Waffen-Plutonium in der Form von Kernwaffen in jedem Fall zu vermeiden, da die hierbei vorhandenen, der Geheimhaltung unterliegenden Informationen über das Design einer Kernwaffe eine internationale Kontrolle der Lagerung verhindern würden. Auch wäre eine sofortige Wiederaufrüstung jederzeit und kurzfristig möglich. Bereits durch verhältnismäßig einfache Maßnahmen wie die Überführung von metallischem Plutonium in Plutoniumdioxid kann die unmittelbare Wiederverwendung des Plutoniums erschwert werden, da sowohl die physikalische wie die chemische Form verändert wird.

Zweitens könnten Optionen darauf abzielen, den Zugriff auf das Plutonium zu erschweren. Dies könnte durch physikalische, chemische oder radiologische Barrieren erreicht werden. Solche Barrieren können beispielsweise durch eine Bestrahlung des Plutoniums in Reaktoren (z. B. in der Form von Uran-Plutonium-Mischoxidd Brennstoffen), aber auch durch eine Mischung mit radioaktiven Abfällen und anschließender Immobilisierung (beispielsweise durch Verglasung) aufgebaut werden.¹³

Als drittes Ziel könnte eine möglichst weitgehende Eliminierung angestrebt werden. Kernwaffenfähiges Material würde dabei dem menschlichen Zugriff vollständig entzogen. Dies könnte durch eine tatsächliche Eliminierung in Reaktoren erzielt werden, die allerdings kaum eine vollständige Beseitigung sein könnte.¹⁴

Für den Umgang mit in abgetrennter Form vorliegendem Plutonium sind also eine Vielzahl verschiedener Optionen denkbar. Neben dem angestrebten Ziel können die denkbaren Optionen zusätzlich in solche unterteilt werden, die einen Einsatz des Plutoniums in Reaktoren vorsehen, und andere, bei denen das Plutonium ohne Reaktoreinsatz direkt immobilisiert werden würde (siehe Abb. 2.2).

Ziel der verschiedenen diskutierten Immobilisierungs-Optionen wäre es, das Plutonium

¹³Weitere diskutierte Möglichkeiten bestünden z. B. in der Lagerung in tiefen Bohrlöchern oder unter dem Meeresgrund. Auch die Durchführung unterirdischer Kernwaffenexplosionen mit dem Ziel, verbleibendes kernwaffenfähiges Material zusammen mit hochradioaktiven Spaltprodukten in das umgebende Gestein einzuschmelzen, wurde diskutiert. Dies würde allerdings den Bemühungen um ein Verbot aller Kernwaffenexplosionen (Kernwaffenteststopp) zu wider laufen.

¹⁴Auch eine Verbringung des Materials in den Weltraum oder die Verdünnung in den Weltmeeren wurde im Kontext der Beseitigung von „Waffenplutonium“ als Option zur Eliminierung des Plutoniums diskutiert und aus verschiedenen Gründen verworfen. Solche Optionen werden hier nicht weiter betrachtet.

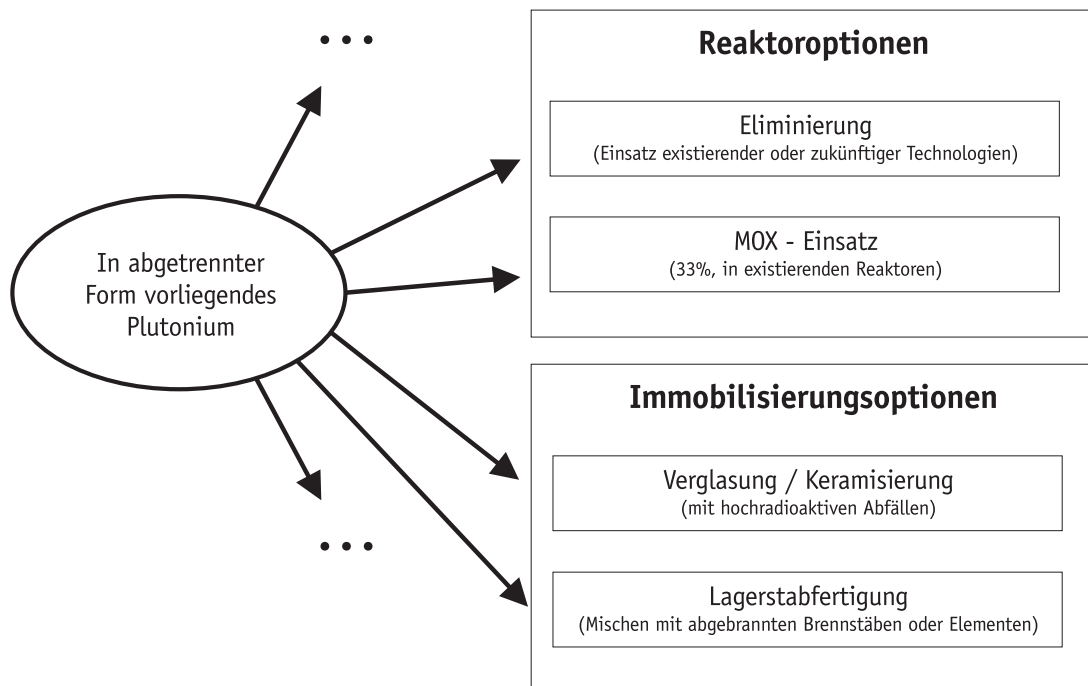


Abbildung 2.2: Unterteilung der wichtigsten denkbaren Optionen zum Umgang mit vorliegendem Plutonium-Beständen.

direkt in eine endlagerfähige Form zu überführen. Dabei soll zumeist durch eine Vermischung mit hochradioaktiven Abfällen eine Strahlungsbarriere — ähnlich wie im Fall der MOX-Option — erzeugt werden, um einen erneuten Zugriff auf das Material zu erschweren.

Ausgehend von der heute bereits großtechnisch durchgeführten Verglasung von hochradioaktiven Abfällen aus der Wiederaufarbeitung ergäbe sich durch eine Zugabe von Plutonium zu diesem Prozess die Option der Direktverglasung. Es könnte jedoch eine getrennte Verarbeitung des Plutoniums und der hochradioaktiven Abfälle sinnvoll sein. Dies geschieht z. B., wenn das Plutonium zunächst durch Einbettung in eine Keramik immobilisiert und das entstehende Produkt anschließend zusammen mit hochradioaktiven Abfällen verglast wird. Dieses Verfahren wurde unter der Bezeichnung „Can-in-Canister“-Variante in den USA bis zum April 2002 untersucht. Die Bemühungen wurden danach eingestellt.¹⁵

Eine weitere Option der Immobilisierung ergäbe sich, wenn Plutonium wie im Falle der MOX-Option zu MOX-Elementen verarbeitet wird, diese jedoch nicht für einen Einsatz in Reaktoren vorgesehen werden. Solche Lagerelemente würden der direkten Endlagerung zugeführt, wobei eine Strahlungsbarriere zum Schutz vor einem unerlaubten Zugriff auf diese Elemente durch eine gemeinsame Lagerung der Elemente in Zwischenlagerbehältern zusammen mit abgebrannten Brennelementen erfolgen würde.

¹⁵Federal Register/Vol. 67, No. 76/Friday, April 19, 2002/Notices: U.S. Department of Energy, Surplus Plutonium Disposition Program.

In Folge der Studien der U.S. National Academy of Sciences wurden insbesondere die Optionen des Einsatzes von Plutonium in der Form von Mischoxid-Brennstoff (MOX) in existierenden zivilen Leistungsreaktoren sowie die Immobilisierung des Plutoniums zusammen mit hochradioaktiven Abfällen verstärkt untersucht. Mit der Einstellung des U.S.-amerikanischen Programms zur Immobilisierung von Plutonium im Jahr 2002 wird sowohl in den USA wie in Russland nur noch die Umsetzung des Plutoniums als MOX-Brennstoff verfolgt.

Anders als bei den Immobilisierungsoptionen soll bei den Reaktoroptionen das Plutonium durch eine Bestrahlung im Reaktor teilweise oder möglichst vollständig umgesetzt und dabei zur Energieerzeugung genutzt werden. Optionen, die auf eine möglichst vollständige (mehr als 95%) Eliminierung des Plutoniums zielen, beruhen auf neuartigen Reaktorkonzepten, welche einen sehr langfristigen Zeithorizont voraussetzen (Liebert et al., 1997; Liebert, Glaser und Pistner, 2000; Generation IV International Forum, 2002). Für solche Optionen sind Aussagen sowohl zu ihrer Realisierbarkeit als auch hinsichtlich einer detaillierten Bewertung aus heutiger Sicht nur sehr schwer zu treffen.

Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden daher speziell solche Optionen weiter untersucht, die den Einsatz von Plutonium in existierenden LWR vorsehen. Die einzige derzeit großtechnisch etablierte Option hierfür ist die Verarbeitung des Plutoniums zu Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoff (MOX) für den Einsatz in Leichtwasserreaktoren. Diese Option kann als Referenz herangezogen werden, da sie die einzige gegenwärtig verfolgte Option für den Umgang mit Plutonium-Beständen sowohl im zivilen wie militärischen Bereich darstellt.

Als ein wichtiger Aspekt für eine Bewertung der Umsetzung von Plutonium in LWR kann die erreichte Reduktion der anfänglich vorhandenen Plutoniummenge angesehen werden (siehe hierzu Kapitel 3.5). Hier zeigt sich ein wesentlicher Nachteil von MOX-Brennstoffen: durch das enthaltene U-238 wird während der Bestrahlung kontinuierlich neues Plutonium erzeugt. Daher kann durch den Einsatz von Plutonium in der Form von MOX-Brennstoff in LWR nur eine relativ geringe Reduktion der Plutoniummengen erreicht werden (siehe Kapitel 10).

Aus diesem Grund werden seit einigen Jahren sogenannte uranfreie Brennstoffe (Inert Matrix Fuels, IMF) weltweit untersucht (Akie et al., 1994; Paratte und Chawla, 1995; Chodak et al., 1996; Kasemeyer, 1998; Glaser, 1998). Bei diesen wird das als Matrix für das Plutonium verwendete Uran durch eine andere geeignete Matrix ersetzt und dadurch die Neuproduktion von Plutonium vermieden. So kann eine deutlich stärkere Reduktion des eingebrachten Plutoniums im Vergleich zu MOX erzielt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Vergleich der MOX-Option mit solchen uranfreien Brennstoffen angestrebt. Im Folgenden werden dazu diese Brennstoffe knapp vorgestellt.

2.5 Uranfreie Brennstoffe zur Plutoniumbeseitigung in LWR

Die Möglichkeit der Verwendung von uranfreien Brennstoffen, speziell zur Umsetzung von Plutonium aber auch für weitere Aktinide, wird international seit ca. zehn Jahren intensiver verfolgt. So findet bspw. seit 1995 jährlich ein Workshop statt, der sich mit der Entwicklung uranfreier Brennstoffe befasst. Daran haben im Zeitraum von 1995–2003 337 Teilnehmer aus 15 Ländern und von 3 internationalen Organisationen teilgenommen (Degueldre, 2003), wobei eine breite Auswahl von Reaktor- und Brennstoffoptionen diskutiert wurde (für einen aktuellen Überblick sei auf Degueldre und Yamashita (2003) und Degueldre (2003) verwiesen).

Insgesamt können drei wesentliche Entwicklungslinien uranfreier Brennstoffe identifiziert werden (Chawla et al., 2001):

- Plutonium Einsatz in existierenden LWR,
- Plutonium Einsatz in schnellen Reaktoren sowie
- die Transmutation von minoren Aktiniden.

Da lediglich der Einsatz von Plutonium in existierenden LWR auf einer relativ kurzen Zeitskala in relevanten Mengen möglich ist, konzentriert sich diese Arbeit wie bereits oben begründet auf die Untersuchung von uranfreien Brennstoffen zur Pu-Beseitigung in existierenden LWR.

In den folgenden Abschnitten werden einige wesentliche Aspekte der bisherigen Diskussion über den Einsatz von plutoniumhaltigen IMF in LWR zusammengefasst. Dabei wird auf solche Aspekte eingegangen, die im Rahmen dieser Arbeit nicht speziell untersucht werden, jedoch wichtige Rahmenbedingungen für diese Arbeit liefern, z. B. hinsichtlich der Wahl einer Brennstoffmatrix.

Für die Auswahl einer geeigneten Brennstoffmatrix zur Aufnahme von Plutonium können eine Reihe von Kriterien herangezogen werden (Oversby et al., 1999). Zu den wesentlichen gehören:

- Ein geringer Einfangsquerschnitt für Neutronen.
- Gute thermodynamische Eigenschaften.
- Stabilität unter Bestrahlung.
- Geringe Herstellungskosten.
- Verwendbarkeit von bestehenden Herstellungstechnologien.
- Eignung für eine direkte Endlagerung.

Auf der Basis dieser Kriterien wurden international verschiedene Materialien untersucht. Dabei können neben keramischen oder metallischen Brennstoffen auch heterogene Brennstoff-Typen in Betracht kommen (Degueldre und Meyer, 2003). Da bei der Durchführung von neutronenphysikalischen Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit die Auswahl einer konkreten Brennstoffmatrix von untergeordneter Rolle ist,¹⁶ soll an dieser Stelle auf eine breitere Diskussion der verschiedenen denkbaren Kandidaten für eine geeignete Matrix verzichtet werden. Es hat sich herausgestellt, dass Yttrium stabilisiertes Zirkoniumdioxid ((Y,Zr)O₂) eine besonders gut geeignete Brennstoffmatrix darstellt (Oversby et al., 1999; Degueldre und Meyer, 2003). Dieser Brennstoff-Kandidat wird in dieser Arbeit für die späteren Rechnungen herangezogen. Seine Eigenschaften werden daher im Folgenden kurz vorgestellt.

Zirkonium weist einen sehr geringen Einfangsquerschnitt für Neutronen auf. Bei einem für diese Arbeit typischen uranfreien Brennstoff mit einer Matrix aus Yttrium stabilisiertem Zirkoniumdioxid, macht die Neutronenabsorption in der Matrix bei einem frischen Brennstoff weniger als ein Prozent der gesamten Absorption im Brennstoff aus. Auch am Ende der Bestrahlung, wenn das enthaltene Plutonium zu einem großen Teil aufgebraucht ist und die Neutronenabsorption im Brennstoff bereits stark von Spaltprodukten verursacht wird, ist der Anteil der Matrix am Neutroneneinfang im Brennstoff mit weniger als fünf Prozent noch relativ gering.

Da Zirkoniumdioxid bei Erwärmung eine Reihe von Phasenübergängen und damit verbundenen Änderungen im Volumen durchläuft, ist es zunächst als Brennstoffmatrix nicht unmittelbar geeignet.¹⁷ Bei der Zugabe von Stabilisatoren wie CaO₂, MgO₂ oder Y₂O₃ entsteht jedoch ein Mischkristall, bei geringen Konzentrationen der Stabilisatoren aus tetragonalem und kubischem, bei höheren mit rein kubischem Gitter, welches beim Erhitzen bis zu Temperaturen von ca. 2500 K keine Phasenübergänge mehr aufweist. Für ein vollständig stabilisiertes (Y,Zr)O₂ sind ca. 8 mol% Yttrium notwendig.¹⁸ Reines Zirkoniumdioxid weist einen im Vergleich mit UO₂ (ca. 2750°C) vergleichbar hohen Schmelzpunkt von 2700°C auf, was relevant bei Leistungsexkursionen in Hinblick auf ein Versagen des Brennstoffs ist. Für vollständig stabilisiertes Zirkoniumdioxid liegt der Schmelzpunkt bei ca. 2300°C. Eine weitere wesentliche Eigenschaft hinsichtlich des Verhaltens eines Brennstoffs ist die Wärmeleitfähigkeit. Hier liegen bislang nur wenige Daten für stabilisiertes Zirkoniumdioxid, insbesondere auch hinsichtlich der Entwicklung der Wärmeleitfähigkeit aufgrund der Bestrahlung vor. Für stabilisiertes Zirkoniumdioxid wurden für einen Temperaturbereich von 300–2000 K Werte der Wärmeleitfähigkeit von ca. 2–3 W/(m·K) angegeben (Degueldre und Meyer, 2003). Im Vergleich hierzu liegen typische Werte der temperaturabhängigen Wärmeleitfähigkeit von UO₂ für Temperaturen von 500–1000 K im Bereich von 2–6 W/(m·K) (Amaya et al., 2002), so dass sich insbesondere im Bereich der niedrigeren Temperaturen deutlich höhere Werte der Wärmeleitfähigkeit ergeben. Eine geringere Wärmeleitfähigkeit von Zirkoniumdioxid führt bereits im Normalbetrieb zu

¹⁶Dies gilt in der Hinsicht, dass die Matrix auch hinsichtlich ihrer möglichst geringen Wirkungsquerschnitte für Neutroneneinfang ausgewählt wird.

¹⁷So ist ZrO₂ bei Raumtemperatur monoklin und geht bei ca. 1000°C in eine tetragonale Struktur von höherer Dichte über.

¹⁸Siehe bspw. WWW.STANFORDMATERIALS.COM/ZR.HTML#INFO, Stand Oktober 2004.

höheren Brennstofftemperaturen und kann im Falle von Transienten ebenfalls höhere maximale Temperaturen bedingen.

Im Paul Scherrer Institut (PSI) der Schweiz wurden Untersuchungen zum Herstellungsprozess einer (Y,Zr)-Matrix und des Einflusses von Stabilisatoren bei der Herstellung der Keramik sowie des Einflusses von Plutonium und verschiedenen Neutronengiften auf das entstehende Produkt durchgeführt (Burghartz et al., 2001). Diese Untersuchungen erlauben eine theoretische Vorhersage von wichtigen Parametern der Brennstoffmatrix, wie den Gitterkonstanten und den erreichbaren Dichten. Dabei wurden Herstellungsprozesse vergleichbar den heute großtechnisch eingesetzten Produktionsprozessen verwendet, wie die mechanische Vermischung der Keramikvorläuferprodukte, Pressen bei ca. 500 MPa und Sintern bei 1725 K für 6 h unter einer CO₂ Atmosphäre, womit 95% der theoretischen Dichte erreicht werden konnten. Als ein wichtiger Parameter wurde dabei die Sintertemperatur identifiziert, welche zum Erreichen einer geeigneten einphasigen Matrix über 1675 K betragen muss.

Ein wichtiger Faktor für die Qualifizierung eines Brennstoffs für den kommerziellen Einsatz ist die Porosität des Brennstoffs in Abhängigkeit von der Materialzusammensetzung und dem konkreten Herstellungsverfahren. Dieser Faktor beeinflusst neben der Frage der Spaltgasfreisetzung im Verlauf des Abbrands auch thermodynamische Eigenschaften des Brennstoffs wie die thermische Leitfähigkeit (Degueldre et al., 2001). Experimentelle Untersuchungen zu (Y,Zr)-Brennstoffen unter Zugabe von Erbium als potenziellem Neutronengift und Cer zur Simulation des Plutoniumanteils ergaben eine erreichbare Dichte von 91,4% der theoretischen Dichte, entsprechend einer Porosität von 8,6%. Ein Versuchsbrennstoff mit Plutonium erreichte 95,1% der theoretischen Dichte, entsprechend 4,9% Porosität (Degueldre et al., 2001).

Der Herstellungsprozess für einen IMF-Brennstoff auf (Y,Zr)-Basis, auch unter Zugabe von brennbaren Neutronengiften, kann daher als etabliert und im wesentlichen vergleichbar mit der Herstellung von konventionellem MOX-Brennstoff angesehen werden. Damit erscheint auch die Herstellung solcher IMF-Brennstoffe in existierenden oder geplanten MOX-Anlagen denkbar (Chawla et al., 2001).

Eine prinzipielle Problematik eines Konzepts uranfreier Brennstoffe liegt in der geringen Erfahrung bzgl. des tatsächlichen Brennstoffverhaltens unter Bestrahlung. Erste Ergebnisse wurden für IMF auf Zirkoniumbasis durch die Bestrahlung mit Xenon-Ionen bei einer niedrigen (60 keV) und einer hohen Energie (1,5 MeV) bei verschiedenen Brennstofftemperaturen ermittelt (Ledergerber et al., 2001). Nach dieser Arbeit kam es nicht zu einer Amorphisierung der Matrix, das Brennstoffschwellen war geringer als 1%vol. für Ionendosen bis zu $2 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$.

Zwei reale Bestrahlungstests werden zur Zeit im Halden Forschungsreaktor (Kasemeyer et al., 2001) und am HFR in Petten durchgeführt (Schram et al., 2001). Bei dem Test am Halden-Reaktor werden drei Brennstäbe mit MOX-Brennstoff und drei weitere mit einer uranfreien Matrix auf der Basis von (Y,Zr)O₂ bestrahlt. Der anfängliche Gehalt an spaltbarem Plutonium beträgt 0,54 g/cm³ für den MOX-Brennstoff sowie 0,6 bis 0,7 g/cm³ für den IMF-Brennstoff. Bis zum Juni 2005 zeigten die Tests im Halden Forschungsreaktor

ein akzeptables Verhalten der Brennstoffe hinsichtlich der Spaltgasfreisetzung und des Brennstoffschwellens (Streit et al., 2005).

Ein für 2005 geplantes Bestrahlungsexperiment mit einem Testbrennelement in einem Leistungsreaktor in der Schweiz ist vorläufig zurückgestellt worden, um zunächst weitere Ergebnisse der Voruntersuchungen am HFR und in Petten abzuwarten.¹⁹

Schließlich stellt Yttrium stabilisiertes Zirkoniumdioxid eine chemisch weitgehend inerte Matrix dar, die schlecht in Wasser gelöst wird und daher eine hohe Beständigkeit hinsichtlich einer späteren direkten Endlagerung aufweist. Damit stellt diese Matrix für einen Einsatz in LWR mit anschließender direkter Endlagerung einen sehr interessanten Kandidaten dar.

Hinsichtlich absehbarer weiterer F&E-Notwendigkeiten werden von Chawla et al. (2001) vier wesentliche Forschungsbereiche für IMF identifiziert:

- Eine Untersuchung des Bestrahlungsverhaltens von bestimmten als geeignet eingestuften Brennstoffkandidaten.
- Eine detaillierte Sicherheitsanalyse mit dem Ziel eines Bestrahlungstests in einem Kernreaktor.
- Eine Analyse der Endlagereigenschaften von bestrahltem IMF unter den heute prognostizierten Endlagerbedingungen.
- Eine Entwicklung von alternativen Brennstoff-Typen als Ausweidlösung für den Fall von negativen Ergebnissen hinsichtlich bislang favorisierter Brennstoffe.

2.5.1 Definition eines uranfreien Brennstoffs

Da die neutronenphysikalischen Eigenschaften eines uranfreien Brennstoffs wesentlich von der enthaltenen Plutoniumkonzentration sowie ggf. zugesetzten Neutronengiften für die Reaktivitätskontrolle und den im Laufe der Bestrahlung daraus entstehenden weiteren Aktiniden und Spaltprodukten bestimmt ist, die Matrix hingegen — definitionsgemäß soll sie möglichst geringe Wirkungsquerschnitte aufweisen, um unter Bestrahlung geringe Veränderungen zu erfahren und nur wenig Reaktivität zu absorbieren — nur eine untergeordnete Rolle für die neutronenphysikalischen Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit spielt, wird daher für alle folgenden Untersuchungen eine einheitliche Standardmatrix verwendet. Für diese wird Yttrium stabilisiertes Zirkoniumdioxid bei einer Dichte von 5 g/cm^3 mit einem Yttrium-Anteil von 5% angenommen, wie sie bspw. von Oversby et al. (1999) diskutiert wird.

Die sich hieraus ergebenden Atomdichten, wie sie für die folgenden Berechnungen verwendet werden, sind in Tabelle 2.5 zusammengefasst.

¹⁹Persönliche Mitteilung C. Degueldre, 13.08.2004.

Nuklid	Matrix	Hüllrohr-Material	Moderator
B-10			3,6346e+18
B-11			1,6226e+19
H-1			4,7716e+22
O-16	5,39941e+22		2,3858e+22
Y-89	2,44839e+21		
Zr-90	1,13373e+22		
Zr-91	2,47238e+21		
Zr-92	3,77909e+21		
Zr-94	3,82977e+21		
Zr-96	6,16994e+20		
Zr-nat		4,58540e+22	

Tabelle 2.5: Atomdichte der im Rahmen dieser Arbeit für die Untersuchung von IMF verwendeten Standardmatrix, des verwendeten Hüllrohr-Materials und des Moderators. Die Dichte der Matrix wurde mit 5 g/cm^3 unabhängig von der enthaltenen Plutoniumkonzentration angenommen, die Angaben für das Hüllrohr-Material und den Moderator wurden wie in OECD/NEA (1995a) gewählt. Die angegebene Konzentration des Bor entspricht 500 ppm im Kühlmittel (Moderator). Für nähere Angaben zu den Details der Berechnungen siehe Kapitel 4.

Kapitel 3

Bewertungskriterien für einen Vergleich von MOX und IMF

Ein Ziel dieser Arbeit ist der Vergleich von uranfreien Brennstoffen (IMF) zum Abbau vorliegender Plutonium-Bestände mit der gegenwärtig verfolgten Option der Nutzung von Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoffen (MOX). Bei einem solchen Vergleich spielen eine Vielzahl an Aspekten eine Rolle, welche nicht alle in dieser Arbeit diskutiert, geschweige denn bewertet werden können. Es liegen jedoch bereits verschiedene, zum Teil sehr umfangreiche internationale Studien vor, welche sich mit der Problematik der Plutoniumbeseitigung auseinander setzen, so bspw. diejenigen von Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (1994, 1995); German-American Academic Council und National Academy of Sciences (1995); Forschungszentrum Jülich (2000); Liebert und Pistner (2001b); Barleon et al. (2004). Im Rahmen dieser Studien wurden eine Reihe von Kriterien bestimmt, die zur Bewertung verschiedener Optionen herangezogen werden können.

Da die Erarbeitung eines ausführlichen Bewertungsschemas zum Vergleich von IMF mit MOX über den Rahmen dieser Arbeit hinausgeht, werden in diesem Kapitel nur die wichtigsten Kriterien hinsichtlich relevanter Unterschiede zwischen einer auf IMF und einer auf MOX basierenden reaktorgestützten Option zum Abbau vorliegender Plutonium-Bestände diskutiert. Es sollen dazu wichtige Indikatoren identifiziert werden, die als Grundlage für eine quantitative Bewertung der verschiedenen Optionen dienen können. Dabei findet eine Konzentration auf Aspekte im Zusammenhang mit den neutronenphysikalischen Eigenschaften von IMF und MOX statt, welche im Rahmen dieser Arbeit detailliert untersucht werden sollen (Liebert, Pistner und Glaser, 2000; Liebert und Pistner, 2001b).

3.1 Bisherige Ansätze zu kriteriengeleiteten Bewertungsverfahren

Eine Bewertung von Optionen zum Abbau vorliegender Plutonium-Bestände hat verschiedene methodische Schwierigkeiten zu berücksichtigen. Zunächst können unterschiedlichste Ziele mit den verschiedenen Optionen verbunden werden. Je nach Akteur (staatlichen Institutionen, Energieversorgungsunternehmen, Nichtregierungsorganisationen) werden die möglichen Ziele hinsichtlich des Grades der Erfüllung eines Ziels durch eine bestimmte Option unterschiedlich eingeschätzt werden. Ebenso kann die Wichtung der verschiedenen Ziele untereinander stark unterschiedlich erfolgen. Schließlich muss eine Auswahl aus den zur Verfügung stehenden Optionen mit prinzipiellen Unsicherheiten umgehen, da viele technische Fragen heute noch nicht abschließend beantwortet werden können. Einen methodischen Ansatz zum Umgang mit solchen Entscheidungsproblemen kann bspw. die präskriptive Entscheidungstheorie liefern (Eisenführ und Weber, 2003). An dieser Stelle kann jedoch kein ausführliches Bewertungsschemas entwickelt werden. Daher sollen im wesentlichen bisherige Ansätze aus der Literatur knapp zusammengefasst und diskutiert werden. So findet sich ein kriteriengeleiteter Ansatz zur Bewertung von verschiedenen Optionen zum Umgang mit Plutonium bereits verschiedentlich in der Literatur bzw. wurde in die deutsche Diskussion eingebracht.

In den bereits genannten Studien der U.S. National Academy of Sciences über Möglichkeiten zum Umgang mit überschüssigen Waffenplutonium-Beständen wurden nahezu alle denkbaren Verfahren vergleichend analysiert und hierzu ein Satz von Kriterien angewendet (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994, 1995). Eine Bewertung anhand der Kriterien wurde durch eine Einstufung der Optionen in drei Kategorien der Kriterienerfüllung (gering, mittel oder hoch) vorgenommen. Als Kriterien wurden hier benannt: technische Unsicherheit, Schwierigkeiten bzgl. der öffentlichen/institutionellen Akzeptanz, Zeitbedarf, Risiken bei der Durchführung, Risiken der Rückgewinnung, Umwelt-, Sicherheits- und Gesundheitsrisiken sowie Kosten. Als weiterer relevanter Aspekt wurde in dieser Bewertung der Einfluss einer Technologiewahl auf die Brennstoffversorgung im Bereich der zivilen Kernenergienutzung benannt. Diese Kriterien wurden auf einer qualitativen Ebene detailliert diskutiert, jedoch wurde kein Versuch einer möglichst quantitativen Einschätzung vorgenommen.

Im Rahmen des U.S.-amerikanischen Entscheidungsprozesses über die Auswahl von Optionen zur Beseitigung überschüssiger Waffenplutonium-Bestände wurden vom Lawrence Livermore National Laboratory im Auftrag des verantwortlichen U.S.-Energieministeriums dann Kriterien für eine Bewertung der verschiedenen Varianten für eine Immobilisierung von Plutonium entwickelt, siehe hierzu bspw. Gray und Gould (1997); Armantrout et al. (1998). Neun wesentliche Kriterien wurden hier benannt: Sicherheit vor Diebstahl oder Abzweigung, Sicherheit vor erneuter Nutzung durch den Eigentümerstaat, technische Reife, die Einhaltung von Umwelt-, Sicherheits- und Gesundheitsvorschriften, hohe Kosteneffektivität, schnelle Umsetzbarkeit, Förderung der Kooperation mit Russland und anderen Staaten, öffentliche und institutionelle Akzeptanz sowie weitere mögliche Vorteile. Für diese Kriterien wurde dann versucht, eine Metrik aufzustellen, um eine möglichst detaillierte

und quantitative Einstufung anhand dieser Kriterien vornehmen zu können.

Ein weitergehender Ansatz zur Entwicklung eines Entscheidungsverfahrens auf der Basis von Kriterien wurde im Auftrag des U.S.-Energieministeriums entwickelt (Dyer et al., 1996, 1997a,b; Dyer, 1999). Hier werden zunächst wesentliche Ziele (Kriterien) identifiziert und diese auf Indikatoren zurückgeführt, die zu einer Bewertung der Zielerfüllung genutzt werden sollen. Als wesentliche Kriterien wurden hier Nichtverbreitung, effiziente Umsetzung und Umwelt- sowie Sicherheitsaspekte bestimmt. Diese wurden auf zugrundeliegende Indikatoren zurückgeführt, bspw. wurden für den Bereich Nichtverbreitung 25 Indikatoren zur Bewertung herangezogen. Anschließend wurden Wichtungsfunktionen bestimmt, anhand derer die für unterschiedliche Indikatoren erreichten Ergebnisse gegeneinander gewichtet werden können. So soll eine abschließende Gesamtbewertung der verschiedenen Optionen erreicht werden.

Im Rahmen der Diskussion um den Umgang mit Plutonium-Beständen im zivilen Bereich wurden von Küppers et al. (1999) wichtige Aspekte für eine Beurteilung der verschiedenen Verfahren benannt. Neben der Zielführung (d. h. dem Erreichen der Endlagerfähigkeit) der Verfahren wurden hier vor allem Aspekte der Machbarkeit (technische Machbarkeit, zeitliche Aspekte, ökonomische Machbarkeit), der Sicherheit (Anlagensicherheit, Sicherheit während notwendiger Transporte, Endlagersicherheit) und der Sicherungsmaßnahmen diskutiert. Allerdings fand auch hier keine systematische quantitative Diskussion anhand genauer spezifizierter Indikatoren statt.

Eine Bewertung anhand von verhältnismäßig wenigen Kriterien wurde im Rahmen eines vom Bundesministerium für Umwelt und Reaktorsicherheit im Forschungszentrum Jülich durchgeführten Workshops vorgeschlagen (Janberg, 2000). Hier wurden als Entscheidungskriterien die Produktqualität bezogen auf Endlagerfähigkeit, der Zeithorizont und die Ökonomie gewählt. Eine Bewertung wurde anhand einer Skala von 0 (k.o.-Kriterium) bis 5 (sehr gut) für verschiedene Optionen der Immobilisierung von Plutonium vorgenommen. Die genannten Kriterien wurden dann mit einem Faktor von 1 (wichtig) bis 3 (äußerst wichtig) gewichtet, um so zu einer Gesamtbewertung der verschiedenen Aspekte zu kommen. Auch wenn dieses Verfahren im Prinzip dem hier verfolgten Ansatz einer Bewertung anhand von Kriterien mittels möglichst quantifizierbarer Indikatoren nahe kommt, scheint eine so weitgehende Reduktion der Problematik auf nur drei Kriterien ebenso unzureichend zu sein wie der Versuch, tatsächlich durch eine einfache quantitative Wichtung zu einem abschließenden „Wertmaßstab“ für die verschiedenen Optionen zu kommen.

Ein darüber hinausgehender, allerdings nicht weiter quantifizierter Versuch einer Bewertung verschiedener Optionen zur Plutoniumbeseitigung findet sich auch bei Barleon et al. (2004). Hier wurde eine Bewertung nach den Kriterien technische Machbarkeit, Umwelt- und Sicherheitsrisiken, Proliferationsresistenz, Verifikation, Zeitbedarf, Kosten und rechtspolitischer Aspekte in einer semi-quantitativen Weise durchgeführt.

Auf der Basis der oben vorgestellten Studien lassen sich wesentliche Entscheidungskriterien formulieren. Diese Oberkriterien umfassen (Liebert und Pistner, 2001b):

- technische Machbarkeit,
- politisch/gesellschaftliche Akzeptanz,
- Umwelt- und Sicherheitsaspekte,
- nukleare Nichtverbreitung und
- Wirtschaftlichkeit.

Für diese wird im Folgenden knapp diskutiert, anhand welcher grundlegender Indikatoren eine Bewertung verschiedener Optionen im Rahmen dieser Kriterien stattfinden könnte. Dabei muss sich die Diskussion an dieser Stelle auf solche Aspekte beschränken, die im weiteren Verlauf dieser Arbeit anhand von neutronenphysikalischen Untersuchungen spezifiziert werden sollen. Im Rahmen dieser Arbeit wird nicht versucht, aus den für die verschiedenen Optionen (MOX, IMF) im weiteren ermittelten Werten der einzelnen grundlegenden Indikatoren zu einer Gesamtbewertung der Optionen zu kommen. Es können letztlich lediglich erste Einschätzungen hinsichtlich der zu erwartenden Vor- und Nachteile im Sinne einer Einschätzung des Potenzials für eine Strategie der Plutoniumbeseitigung formuliert werden.

3.2 Technische Machbarkeit

Die Frage der technischen Machbarkeit impliziert zunächst eine Abschätzung des Realisierungsgrades der verschiedenen Optionen. Während die Verwendung von MOX in Europa bereits eine etablierte Technologie darstellt, ist die Realisierbarkeit von IMF bislang noch nicht abschließend demonstriert.

Wie bereits oben diskutiert, sind die prinzipiellen Herstellungsverfahren bei Verwendung einer keramischen Matrix vergleichbar mit der MOX-Herstellung, so dass hier keine wesentlichen neuen Anforderungen auftreten. Neben dem erfolgreichen Abschluss von Bestrahlungsversuchen zur Demonstration der materialtechnischen Eignung einer inerten Matrix (Kasemeyer et al., 2001; Schram et al., 2001) sind weitere Versuche zur Qualifizierung mit Testbrennelementen jedoch unumgänglich (Degueldre, 2003).

Neben der Qualifikation eines Brennstoffs sind hinsichtlich der Möglichkeiten eines Reaktoreinsatzes offene Punkte zu klären. So stellt insbesondere die Reaktivitätskontrolle bei IMF aufgrund der größeren Unterschiede in der Reaktivität zwischen frischem und abgebranntem Brennstoff besondere Anforderungen an existierende Reaktoren. Neben der Frage der *mittleren Reaktivität* zu Beginn eines Reaktorzyklusses ist hierfür auch die *Wirksamkeit* des zur Reaktivitätskontrolle verwendeten Bor von Bedeutung.

Die Wirksamkeit des thermischen Neutronenabsorbers Bor, welcher zur Reaktivitätskontrolle eingesetzt wird, ist bei einem härteren Neutronenspektrum, wie es bei der Verwendung von plutoniumhaltigen Brennstoffen auftritt, gegenüber konventionellen Uran-Brennstoffen reduziert. Daher muss das Reaktivitätskontrollsystem eines Reaktors in der

Lage sein, im Laufe des Brennstoffabbrands größere Konzentrationsunterschiede von Bor im Kühlmittel zu bewältigen. Auch wird die Reaktionsgeschwindigkeit des Kontrollsystems bei gleichbleibender Bor-Injektionsrate in das System bei einem härteren Spektrum geringer (Schlosser und Krebs, 1993). Auf diese Aspekte wird in den Kapiteln 6 und 8 näher eingegangen.

3.3 Politisch/gesellschaftliche Akzeptanz

Bei einem allgemeinen Vergleich von Optionen zum Umgang mit vorliegenden Plutonium-Beständen spielen Fragen der politischen und gesellschaftlichen Akzeptanz eine besondere Rolle. Hinsichtlich der möglichen Unterschiede zwischen einer auf MOX und einer auf IMF basierenden Option sind jedoch nur sehr geringe Auswirkungen auf die politisch/gesellschaftliche Akzeptanz zu erwarten. Positiv kann sich bei der Nutzung von IMF an Stelle von MOX die zu erwartende stärkere Reduktion der später endzulagernden Plutonium-Gesamtmenge auswirken. Eine Bewertung in diesem Bereich ist jedoch sehr stark von den nationalen Planungen hinsichtlich der weiteren Kernenergienutzung abhängig.

3.4 Umwelt- und Sicherheitsaspekte

Hinsichtlich möglicher Umweltaspekte sind beim Vergleich von MOX mit IMF insbesondere Unterschiede der Radiotoxizität des abgebrannten Brennstoffs zu berücksichtigen. Da im Rahmen dieser Arbeit das Inventar der verschiedenen abgebrannten Brennstoffe bestimmt wird, könnte ein derartiger Vergleich im Prinzip durchgeführt werden. Da sich wesentliche Unterschiede vor allem in Bezug auf den Aufbau von minoren Aktiniden ergeben, sind hier die Unterschiede zwischen MOX und IMF vor allem hinsichtlich der langfristigen Radiotoxizität relevant (Shelley et al., 2000). Mögliche Freisetzungspfade bspw. bei einer späteren Endlagerung werden jedoch wesentlich von der verwendeten Brennstoffmatrix abhängen. Dieser Aspekt soll daher im Rahmen dieser Arbeit noch nicht untersucht werden, kann jedoch in einer späteren Arbeit berücksichtigt werden.

Bei einer Reaktorkernauslegung sind außerdem verschiedene Sicherheitsaspekte aus neutronenphysikalischer Sicht zu beachten. Die wesentlichen sind nach International Atomic Energy Agency (2002, Abschnitt 2.4):

- Änderungen der Reaktivität über den Abbrand und resultierende Anforderungen an die Reaktorsteuerung,
- Position und Wirksamkeit der Steuerstäbe,
- Wirksamkeit des Bor im Kühlmittel,
- Werte der Reaktivitätskoeffizienten (Brennstofftemperatur, Moderatorichte) für alle vorgesehenen Betriebszustände und Transienten,

- hinreichend gleichmäßige Leistungsverteilung im Kern und den Brennelementen.

Die Aspekte der abbrandabhängigen Änderung der Reaktivität sowie der Wirksamkeit der Borsäure im Kühlmittel sind bereits unter dem Kriterium der technischen Machbarkeit eingeführt worden. Hinsichtlich der Position und Wirksamkeit der Steuerstäbe sollen im Rahmen dieser Arbeit keine Aussagen gemacht werden, da hierzu eine vollständige Reaktorkernauslegung zu untersuchen wäre, die über die hier verfolgte parametrische Untersuchung von uranfreien Brennstoffen hinausgeht.¹ Ergebnisse anderer Untersuchungen lassen hier jedoch keine prinzipiellen Schwierigkeiten hinsichtlich der Nutzung von IMF erwarten (Kasemeyer et al., 1998). Auch eine Untersuchung hinsichtlich der Leistungsverteilung im Kern soll im Rahmen dieser Arbeit aufgrund der dafür notwendigen Reaktorkern-Rechnungen und insbesondere der notwendigen Kopplung mit thermodynamischen Untersuchungen nicht vorgenommen werden. Sie kann ggf. für die im Rahmen dieser Arbeit als besonderes relevant identifizierten Brennstoffzusammensetzungen bei einer gewählten IMF-Strategie in zukünftigen Arbeiten durchgeführt werden. Hinsichtlich einer Vermeidung von Unterschieden in der Leistungsdichte wird bspw. die Verwendung von brennbaren Neutronengiften diskutiert (Stanculescu et al., 1999). Diese werden zumindest in Hinblick auf ihren Einfluss auf die Reaktivitätsentwicklung von IMF in Kapitel 9 behandelt.

3.4.1 Reaktivitätskoeffizienten

Demgegenüber ist für eine Bewertung von IMF im Vergleich zu MOX aus sicherheitstechnischer Sicht eine Kenntnis der wesentlichen Reaktivitätskoeffizienten von besonderer Bedeutung. Diese erfassen die Änderung der Reaktivität bei einer Änderung von Betriebsparametern wie der Temperatur, dem Druck oder der Leistung (siehe ausführlicher Kapitel 4.4 sowie 10.1.1 und 10.1.2).

Neben der oben angesprochenen Bor-Wirksamkeit (boron-worth coefficient, BWC) sind die wichtigsten:

- der *Brennstoff-Temperaturkoeffizient* (fuel temperature coefficient, FTC), auch prompter Temperaturkoeffizient² oder Doppler-Koeffizient,
- der *Moderator-Temperaturkoeffizient* (moderator temperature coefficient, MTC) und
- der *Dampfblasen-Koeffizient* (void coefficient, MVC).

¹Allerdings können die gewonnenen Ergebnisse hinsichtlich der abbrandabhängigen Entwicklung der Bor-Wirksamkeit (siehe speziell Kapitel 7 und 9) auch zur Orientierung hinsichtlich der Wirksamkeit von Steuerstäben herangezogen werden.

²Eine Leistungsänderung führt unmittelbar zu einer Änderung der Brennstofftemperatur, während sich die Moderatortemperatur erst mit einer gewissen Verzögerung durch den Wärmetransport an eine neue Leistung anpasst.

Prinzipiell sollten die Werte dieser Koeffizienten bei allen Abbränden und Betriebszuständen negativ sein, um eine negative Rückkopplung bei Abweichungen vom Gleichgewichtszustand zu gewährleisten.

Von Kloosterman und Damen (1999) werden Ergebnisse von Benchmark-Berechnungen für die Reaktivitätskoeffizienten verschiedener IMF diskutiert. Danach ist bspw. der FTC für IMF mit etwa -1 pcm/K um ca. einen Faktor zwei geringer als in MOX-Brennstoff mit etwa $-2,6$ pcm/K. Die Auswirkungen dieses geringeren FTC hängen jedoch stark von den thermischen Eigenschaften des Brennstoffs, insbesondere der Wärmekapazität ab. Von Yamashita et al. (2001) und Akie und Nakamura (2001) werden Möglichkeiten diskutiert, den geringen FTC von IMF im Vergleich zu MOX zu erhöhen. Von den Autoren wird ein deutlich höherer Betrag des FTC gefordert. Dazu schlagen die Autoren die Zugabe von entweder 18 mol% ThO₂ oder 8 mol% UO₂ zum Brennstoff vor. Alternativ können hierfür verschiedene brennbare Neutronengifte eingesetzt werden (Porta und Asou, 2001). Deren Auswirkungen auf den FTC bei IMF werden in Kapitel 10.1.1 untersucht.

Beim MTC und MVC führt der höhere Plutoniumgehalt von MOX- oder IMF-Brennstoffen im Vergleich zu Uran-Brennstoffen typischerweise zu einem stärker negativen Koeffizienten, da diese Brennstoffe bei gleicher Geometrie stärker untermoderiert sind als Uran-Brennstoff. Dies wirkt sich besonders am Ende eines Einsatzzyklusses aus, wenn bei der Abschaltung des Reaktors die Moderatortemperatur abnimmt und somit Reaktivität freigesetzt wird (Schlosser und Krebs, 1993).³ Hier muss bspw. sichergestellt sein, dass eine hinreichende Abschaltreaktivität vorhanden ist.

3.4.2 Dynamische Untersuchungen

Die bisher diskutierten Reaktivitätskoeffizienten können im Rahmen von reaktordynamischen Untersuchungen zur Analyse des Störfallverhaltens (siehe bspw. Smidt (1979, Kap. 6)) von IMF beim Vergleich mit MOX herangezogen werden. Über die Reaktivitätskoeffizienten hinaus wäre hierzu auch die Kenntnis des Anteils der verzögerten Neutronen zur Bestimmung des Zeitverhaltens bei Störungen notwendig. Aussagen zum Anteil der verzögerten Neutronen können mit dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Neutronentransportprogramm MCNP (siehe Kapitel 4.2) nicht unmittelbar bestimmt werden. Prinzipiell könnten diese jedoch unmittelbar aus den mit MCNP gewonnenen effektiven Wirkungsquerschnitten mit Hilfe der tabellierten Daten für den Anteil der verzögerten Neutronen an der Spaltung der relevanten Nuklide (Tuttle, 1975; Brady und England, 1989) abgeschätzt werden, darauf soll im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht weiter eingegangen werden.

Auch hinsichtlich des zeitabhängigen Verhaltens von IMF liegen erste Untersuchungen vor. So wurde von Damen und Kloosterman (2001) ein einfaches Punkt-kinetisches Modell

³Ein negativer MTC ist ebenso notwendig für die Dämpfung von sogenannten Xe-135 Oszillationen, die zu Schwankungen der lokalen Leistungsdichte führen. Hier sind Faktoren von bis zu drei möglich, ein stärker negativer MTC führt jedoch zu einer Reduktion dieses Effekts (U.S. Department of Energy, 1993).

mit einer Gruppe verzögerter Neutronen verwendet, um die Eigenschaften von IMF beim Reaktoreinsatz zu untersuchen. Hierzu wurden von den Autoren Simulationsrechnungen für einen Brennstoff mit $0,5 \text{ g/cm}^3$ reaktorgrädigem Plutonium⁴ durchgeführt. Neben abbrandabhängigen Reaktivitätskoeffizienten (FTC, MTC) wurden dabei auch andere dynamische Eigenschaften (Neutronengenerationsdauer, Anteil der verzögerten Neutronen) für diesen Brennstoff bestimmt. Im Gegensatz zu Uran-Brennstoff variieren diese für den untersuchten IMF im Laufe des Abbrands sehr stark. So steigt der FTC von $-1,0 \text{ pcm/K}$ bei Beginn der Bestrahlung (beginning of life, BOL) bis auf $+0,5 \text{ pcm/K}$ bei 1200 Volllasttagen (full power days, FPD). Ebenso ändert sich der MTC von $-10,0 \text{ pcm/K}$ bei BOL und nimmt nach einem starken Anstieg gegen Ende der Bestrahlung (end of life, EOL) einen Wert von $+150,0 \text{ pcm/K}$ bei EOL an (Damen und Koosterman, 2001).⁵ Diese Änderung des FTC führt zu einer starken positiven Rückkopplung, die nach Damen und Koosterman (2001) ab einem Abbrand von ca. 800 FPD zu instabilem Verhalten des Reaktors bei Störfällen führen könnte. Als Ansätze zur Lösung dieses Problems führen die Autoren bspw. die Zugabe eines geringen Anteils von Uran zum frischen Brennstoff oder die Verbesserung der thermodynamischen Eigenschaften der Brennstoffmatrix an.

3.5 Nukleare Nichtverbreitung

Bereits in Kapitel 2.3 wurde auf die Problematik der zivil-militärischen Ambivalenz vorliegender Plutonium-Bestände eingegangen und als ein mögliches Konzept zur Reduzierung von Proliferationsgefahren die Erhöhung der Proliferationsresistenz vorgeschlagen (Pistner et al., 2001; Pistner, 2002).

Im Kontext der Beseitigung von Waffenplutonium-Beständen wurde von der U.S. National Academy of Sciences der Begriff des Abgebrannte-Brennelemente-Standards (*Spent Fuel Standard*, SFS) eingeführt (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994). Er verlangt, Plutonium in einen Zustand zu überführen, in welchem es mindestens so unattraktiv und unzugänglich für die Wiedergewinnung und den Einsatz in Kernwaffen ist, wie Plutonium in abgebrannten Brennelementen kommerzieller Reaktoren. Hierbei gründet sich die Einführung des SFS darauf, dass die Menge des Plutoniums, welches durch die zivile Kernenergienutzung erzeugt wurde und in abgebranntem Brennstoff eingebettet vorliegt, die Menge des im militärischen Bereich erzeugten Plutoniums weit übersteigt (siehe hierzu auch Kapitel 2.1). Ob durch den SFS ein langfristig sinnvoller Standard für die proliferationsresistente Lagerung von Plutonium definiert ist bzw. welche Vorteile eine über den SFS hinaus gehende Option eröffnen könnte, wird in diesem Zusammenhang jedoch nicht diskutiert.

Auch wenn keine quantitativ eindeutige Definition des SFS gegeben werden kann, wurde

⁴Dies entsprach in seiner Isotopenzusammensetzung etwa dem in dieser Arbeit definierten RPu, siehe Tabelle 2.1.

⁵Bei 1100 FPD ist der FTC mit $-0,26 \text{ pcm/K}$ immer noch negativ, würde jedoch für einen Uran-Brennstoff noch bei $-2,5 \text{ pcm/K}$ liegen. Der Wert des MTC ist für dieses IMF bei 1100 FPD bereits positiv mit einem Wert von $+78,0 \text{ pcm/K}$, gegenüber $-29,0 \text{ pcm/K}$ für Uran-Brennstoff.

das U.S.-amerikanische Verständnis des SFS in verschiedenen Dokumenten näher spezifiziert (U.S. Department of Energy, Office of Fissile Materials Disposition, 1995; Hinton et al., 1996; Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1999, 2000). Ein wesentlicher auch dem SFS zugrunde liegender Gedanke wurde bereits in Kapitel 2.3 ausgeführt. Danach tragen unterschiedliche Faktoren dazu bei, eine Abzweigung von Plutonium für Kernwaffenzwecke zu verhindern oder zu erschweren.

Intrinsische Faktoren, die eine Abzweigung von Plutonium erschweren können, ergeben sich beispielsweise aus der Art und Weise, wie Plutonium gelagert wird bzw. in welcher Form es vorliegt. So soll eine primäre Barriere gegen den Zugriff auf Plutonium dadurch errichtet werden, dass Plutonium in Gebinde verbracht wird, in denen es mit stark strahlenden, hochradioaktiven Abfällen vermischt vorliegt, so dass ein möglicher Proliferator beim Zugriff auf das Material und beim Umgang mit diesem in der Lage sein müsste, das Plutonium zunächst durch eine chemische Wiederaufarbeitung von den radioaktiven Abfällen zu trennen. Sofern er die hierfür benötigten Technologien nur unzureichend beherrscht bzw. zur Verfügung hat, wie dies im Falle von substaatlichen Akteuren der Fall sein könnte, muss er massive gesundheitliche Gefährdungen befürchten. Weitere Faktoren, die zu einem erschwerten Zugriff auf Plutonium beitragen können, sind z. B. die physikalischen Eigenschaften von Gebinden, die Plutonium enthalten, wie deren Größe und Gewicht.

Eine Zusammenstellung von Eigenschaften typischer Gebinde, wie sie im Rahmen der Beseitigung von Plutonium aus militärischen Beständen anfallen könnten, im Vergleich zu Formen der derzeitigen Plutoniumlagerung findet sich in Tabelle 3.1 (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994, S. 68).

Aus dieser Tabelle lassen sich mehrere relevante Unterschiede bzgl. des Schutzes von Plutonium vor Abzweigungen ablesen. Liegt Plutonium in metallischer oder Pulverform vor, so müssen nur relativ kleine Massen (im Bereich kg) transportiert werden. Die Abmessungen einer solchen Masse liegen im Bereich von Zentimetern. Demgegenüber weisen Gebinde, welche Plutonium in anderer Form enthalten (z. B. Brennelemente), eine Masse in der Größenordnung von mehreren hundert Kilogramm auf, ihre Abmessungen liegen in der Größenordnung von Metern. Damit setzt der Transport solcher Gebinde den Einsatz von Maschinen (Lastwagen etc.) voraus, was die Entdeckung und Verhinderung einer solchen Tätigkeit bereits erleichtert. Des weiteren liegt das Plutonium in solchen Gebinden in einer verdünnten Form vor, was bedeutet, dass es erst durch chemische Verfahren aus diesen Gebinden abgetrennt werden muss. Dies ist allerdings noch keine tiefgreifende intrinsische Maßnahme. Entscheidend ist im Falle von abgebrannten Brennelementen die mit ihnen verbundene Strahlenbarriere. Diese bewirkt einerseits eine erheblich erschwerte Handhabung der Gebinde, wenn Strahlenbelastungen vermieden werden sollen, andererseits wird auch die chemische Prozessführung bei einer etwaigen Abtrennung davon beeinträchtigt.

Bei einer Umsetzung von Plutonium in der Form von MOX oder IMF bleiben bestrahlte Brennelemente als Endprodukt zurück. Bei diesen tragen anfänglich auch Nuklide mit relativ kurzen Halbwertszeiten zur Strahlenbarriere bei. Nach ca. 10 Jahren sind, wie im

Alter	Masse [kg]	Max. Größe [cm]	Pu/Einheit [kg]	Pu-Konz. [kg/kg]	γ -Dosisrate [Sv/h]	
					Oberfläche	Abstand 1 m
RPu-Kugel						
	6	9	6	1	0,17	3×10^{-4}
WPuO ₂						
	Pulver bei 1 g/cm ³			0,88	0,01	9×10^{-5}
RPuO ₂						
	Pulver bei 1 g/cm ³			0,88	0,2	0,002
MOX-Brennelement (WPu)						
unbestrahlt	658	410	25	0,038	3×10^{-4}	3×10^{-5}
MOX-Brennelement (WPu), geringer Abbrand von 0,4 MWd/kg(HM)						
nach 2 Jahren	658	410	23	0,035	500	45
nach 10 Jahren	658	410	23	0,035	4,4	0,4
nach 30 Jahren	658	410	23	0,035	1,9	0,17
nach 100 Jahren	658	410	23	0,035	0,37	0,03
MOX-Brennelement (WPu), typischer Abbrand von 40 MWd/kg(HM)						
nach 10 Jahren	658	410	18	0,027	440	40
nach 30 Jahren	658	410	18	0,027	200	18
nach 100 Jahren	658	410	18	0,027	40	3,6
WPu in Borsilikatglas, 2% WPu und 20% hochradioaktive Abfälle						
frisch	2200	300	34	0,02	50	9
nach 10 Jahren	2200	300	34	0,02	40	7,2
nach 30 Jahren	2200	300	34	0,02	25	4,5
nach 100 Jahren	2200	300	34	0,02	5	0,9

Tabelle 3.1: Physikalische Eigenschaften und Stärke einer radiologischen Barriere verschiedener möglicher Plutonium-Lagerformen gemäß Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (1994, S. 68). Die Angaben für „Waffenplutonium“ beziehen sich auf einen Gehalt von 0,2% Am-241, bei „Reaktorplutonium“ ist ein Gehalt von 4% Am-241 angenommen. Die γ -Dosisrate gibt die von einem Menschen in vorgegebenem Abstand aufgenommene Strahlendosis pro Zeiteinheit an. Für die Strahlendosis ist vor allem die γ -Strahlung aufgrund ihrer hohen Reichweite und der schlechten Möglichkeit der Abschirmung relevant. Bei Plutoniummetall ist eine Dichte von 15,7 g/cm³ zugrundegelegt.

Falle einer möglichen Immobilisierung zusammen mit Spaltprodukten,⁶ die kurzlebigen Nuklide zerfallen, und es sind im Wesentlichen noch Nuklide mit einer Halbwertszeit von etwa 30 Jahren relevant.⁷ Ein typischer Wert, der für die Einhaltung des SFS erreicht werden soll, ist eine Dosisleistung von 1 Sievert pro Stunde in einem Meter Entfernung von der Mitte eines Gebindes, welche auch nach 30 Jahren noch erreicht werden sollte (U.S. Department of Energy, Office of Fissile Materials Disposition, 1995). Bereits bei einer Dosis von einem Sievert, wie man sie in einem Meter Abstand nach einer Stunde erhalten würde, besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit, Effekte einer akuten Strahlenerkrankung zu erfahren, die Wahrscheinlichkeit für Mortalität ist allerdings niedrig (0–10%). Im Bereich von 1–10 Sv nimmt die Mortalität stark zu (0–90%), oberhalb von 10 Sv ist sie

⁶Bei einer Immobilisierung werden Spaltprodukte aus der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente verwendet. Diese wurden üblicherweise mehrere Jahre vor der Wiederaufarbeitung gelagert.

⁷Eine wichtige Rolle spielt bspw. die aus dem Zerfall von Cs-137 stammende harte Gammastrahlung.

extrem hoch (90–100%) (Hinton et al., 1996). Hinsichtlich der bisher genannten Aspekte der Proliferationsresistenz sind jedoch keine wesentlichen Unterschiede zwischen MOX und IMF zu erwarten.⁸

Demgegenüber ergeben sich deutliche Unterschiede einmal hinsichtlich der in den abgebrannten Brennelementen verbliebenen *Plutonium-Menge* (sowohl hinsichtlich der *Gesamtmenge* als auch der *Konzentration*) und des weiteren bzgl. der *Qualität* des verbleibenden Plutoniums für mögliche Waffenanwendungen. Die in einem abgebrannten Brennelement verbleibende Plutonium-Menge entscheidet bspw. darüber, ob die Abzweigung und Plutoniumabtrennung bereits aus einem einzigen Brennelement eine ausreichende Menge Plutonium zur Konstruktion einer Kernwaffe bereitstellen würde. Die Konzentration des enthaltenen Plutoniums beeinflusst neben der zur Gewinnung einer bestimmten Menge an Plutonium umzusetzenden Brennstoffmenge auch die zur Abtrennung benötigte Effizienz eines Verfahrens.

Des weiteren ist die Qualität für Kernwaffenanwendungen des verbleibenden Plutoniums aus MOX und IMF stark unterschiedlich. Diese kann wesentlich an der *Isotopenzusammensetzung* des Plutoniums gemessen werden. Sie wirkt sich durch die unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte der Pu-Isotope auf die *kritische Masse* des Plutoniums und aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten und des Anteils an Spontanspaltungen auf die *Wärmentwicklung* und die *Neutronenrate* aus. Diese Eigenschaften sind wesentlich für eine Bewertung der Qualität des verbleibenden Plutoniums hinsichtlich seiner Verwendbarkeit in Kernwaffen (für eine ausführlichere Diskussion siehe Anhang C). Da sämtliche Plutoniumisotope mit schnellen Neutronen in einer Kernwaffe spaltbar sind, unterscheidet sich die kritische Masse der verschiedenen Pu-Isotope nicht besonders stark (siehe bspw. Tabelle C.2).⁹ Auf die Unterschiede in der kritischen Masse wird daher im Rahmen dieser Arbeit nicht näher eingegangen. Dagegen führen Differenzen in der *Wärmentwicklung* und der *Neutronenrate* zu deutlichen Unterschieden hinsichtlich der Handhabbarkeit des Materials und den Anforderungen an die Waffentechnik. Auch wenn die damit verbundenen Hindernisse nicht ohne weiteres quantifiziert werden können, so kann der Qualität des verbleibenden Plutoniums doch eine nennenswerte Barrierewirkung zugesprochen werden (Kankeleit et al., 1989; Mark, 1993; Pellaud, 2002).

Bei der Frage nach der Wirksamkeit intrinsischer Barrieren spielt auch eine wichtige Rolle, welche möglichen Akteure für eine Abzweigung in Betracht kommen. So kann sowohl hinsichtlich einer Abzweigung durch das Eigentümerland (offen oder verdeckt), wie hin-

⁸Als ein relevanter Unterschied können jedoch die im Falle von IMF in Abhängigkeit von der verwendeten Brennstoffmatrix verschiedenen Abtrennmöglichkeiten des Plutoniums angesehen werden. Während für MOX die erneute Abtrennung von Plutonium mit den heute etablierten Verfahren der Wiederaufarbeitung möglich ist, wären bei einer Einbettung bspw. in die oben diskutierte Matrix aus Yttrium stabilisiertem Zirkoniumdioxid andere Verfahren notwendig, daher könnten existierende Anlagen nicht unmittelbar genutzt werden.

⁹Da eine kritische Masse in der Größenordnung von wenigen Kilogramm liegt und daher im Vergleich zur Gesamtmenge der vorliegenden Plutonium-Bestände sehr klein ist, würde auch ein Faktor zwei hinsichtlich der Vergrößerung der kritischen Masse noch keine starke Änderung bedeuten. Insgesamt hängt die tatsächlich benötigte Menge an Plutonium auch wesentlich von der zur Verfügung stehenden Waffentechnik ab, da durch eine Kompression des Plutoniums bereits bei deutlich geringeren Massen eine kritische Anordnung entsteht.

sichtlich eines Diebstahls durch einen anderen Staat oder auch eine substaatliche Organisation bzw. von Einzelpersonen unterschieden werden. In Tabelle 3.2 ist der Versuch einer Bewertung der bisher diskutierten intrinsischen Barrieren gemäß Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (2000) dargestellt. Für den Bereich der zivilen Kernenergie wurden bspw. von Nuclear Energy Research Advisory Committee (NERAC) (2001) und International Atomic Energy Agency (2004) sehr vergleichbare Kriterien zur Bewertung der Proliferationsresistenz verschiedener Nukleartechnologien aufgestellt. Auch in Nuclear Energy Research Advisory Committee (NERAC) (2000, Tab. 3, S. 21) wurden diese Kriterien in ähnlicher Weise hinsichtlich ihrer Wirksamkeit gegenüber spezifischen Abzweigungsszenarien eingeschätzt. Die Autoren kommen praktisch zu den selben Schlussfolgerungen wie Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (2000).

Ohne sämtliche Aspekte im Detail diskutieren zu wollen, kann festgestellt werden, dass hinsichtlich der Barrierewirkungen gegen eine Abzweigung durch das Eigentümerland lediglich die notwendige Umsatzmenge (d. h. die Konzentration des Plutoniums im verbleibenden Gebinde) und die Isotopenzusammensetzung als relevant (Mittel¹⁰) eingestuft werden.¹¹ Auch hinsichtlich der übrigen Abzweigungsszenarien spielt der Aspekt der Konzentration des Plutoniums im Gebinde eine wichtige Rolle (Hoch), die Bedeutung der Isotopenzusammensetzung wird jedoch lediglich hinsichtlich einer staatlichen Abzweigung als relevant eingestuft. Bei Abzweigungsversuchen durch eine substaatlichen Organisation spielt die Qualität des Plutoniums eher eine untergeordnete Rolle. Insgesamt kann festgehalten werden, dass bei einem Schwerpunkt auf die Verhinderung bzw. Erschwerung nuklearer Proliferation durch Staaten insbesondere der Konzentration des verbleibenden Plutoniums und der Isotopenzusammensetzung eine wichtige Rolle zur Bewertung verschiedener Optionen zukommt.

3.6 Wirtschaftlichkeit

Unter den heute gegebenen Randbedingungen ist eine Nutzung von Plutonium in der Form von MOX in existierenden Leichtwasserreaktoren nicht wirtschaftlich (für eine ausführliche Diskussion siehe Anhang B). Erst ein deutlicher Anstieg der Uran-Brennstoffpreise, die nach unterschiedlichen Schätzungen frühestens in einer Dekade, voraussichtlich jedoch nicht vor der Mitte dieses Jahrhunderts zu erwarten wären, oder durch massive Kosteneinsparungen bei der Wiederaufarbeitung und MOX-Fertigung könnte sich an dieser Ausgangsbedingung etwas ändern. Damit kann aus heutiger Sicht eine Nutzung von Plutonium in LWR aus ökonomischer Sicht nicht gerechtfertigt werden.

Für eine Bewertung von Reaktoroptionen zum Umgang mit Plutonium ist daher zunächst davon auszugehen, dass mit der Herstellung plutoniumhaltiger Brennstoffe höhere Kosten verbunden sind als mit dem Einsatz von konventionellen Uran-Brennstoffen. Um diese zu

¹⁰Für das Eigentümerland wird keine der Barrieren in der Wirksamkeit als Hoch eingeschätzt.

¹¹Unterschiede hinsichtlich der Entdeckung einer Abzweigung durch thermische oder nukleare Signale sind im Falle von IMF im Vergleich zu MOX eher nicht zu erwarten.

Barriere	Bedeutung der Barriere für		
	Eigentümerland	Diebstahl durch einen dritten Staat	Diebstahl durch substaatliche Organisationen
Barrieren gegen eine Abzweigung des Plutoniums aus der Lagerstätte			
Masse und Größe des Gebindes	Keine bis Gering	Mittel	Mittel
(geringe) Konzentration von Pu im Gebinde	Keine bis Gering	Hoch	Hoch
Radiologische Barriere	Gering	Mittel	Mittel
Techn. Schwierigkeit der Pu Abtrennung vor Ort	Keine bis Gering	Hoch	Hoch
Thermische, chemische oder nukleare Signale zur Entdeckung	Keine bis Mittel	Mittel bis Hoch	Mittel bis Hoch
Barrieren gegen eine Abtrennung des Plutoniums aus der Lagerform			
Techn. Schwierigkeit des Zerlegens	Gering	Gering bis Mittel	Mittel
Techn. Schwierigkeit der Abtrennung	Gering	Mittel bis Hoch	Hoch
Notwendige Umsatzmenge	Gering bis Mittel	Mittel bis Hoch	Hoch
Gefahr für Beschäftigte	Gering	Mittel	Mittel
Signal für Entdeckung	Keine bis Mittel	Mittel bis Hoch	Hoch
Barrieren gegen eine Verwendung des Plutoniums in Kernwaffen			
Isotopenzusammensetzung in Relation zu WPu	Mittel	Mittel	Gering

Tabelle 3.2: Intrinsische Barrieren und ihre Wirksamkeit gegen verschiedene Proliferationsszenarien gemäß Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (2000).

minimieren sollte daher zum einen der Herstellungsprozess von uranfreien Brennstoffen keine relevanten Mehrkosten gegenüber MOX-Brennstoffen aufweisen. Diese Bedingung wäre bspw. bei den im Rahmen dieser Arbeit angenommenen IMF auf der Basis von Yttrium stabilisiertem Zirkoniumdioxid voraussichtlich erfüllt (Degueldre, 2003). Weiterhin spielt aus ökonomischer Sicht der *erreichbare Abbrand* eine wichtige Rolle, da bei gegebenen Kosten der Brennelementfertigung ein erhöhter Abbrand die Zahl der benötigten Brennelemente reduziert.¹²

¹²Hierbei wird davon ausgegangen, dass die anfallenden Kosten zunächst proportional zur Zahl der herzustellenden Brennelemente sind.

3.7 Zusammenfassung physikalisch relevanter Indikatoren und Identifikation der Fragestellungen

Aus der bisherigen Schilderung von möglichen Unterschieden hinsichtlich einer Verwendung von IMF gegenüber MOX lassen sich damit einige wesentliche Indikatoren für einen Vergleich der beiden Optionen identifizieren.

Hinsichtlich der technischen Machbarkeit spielen Fragen der Reaktivitätskontrolle eine wichtige Rolle. Hierfür werden im Rahmen dieser Arbeit Untersuchungen zum Reaktivitätsverlauf bei IMF mit unterschiedlichen anfänglichen Zusammensetzungen durchgeführt. Hierzu kann hinsichtlich der anfänglichen Plutonium-Konzentration in IMF und der Verwendung von brennbaren Neutronengiften (Art und Konzentration) unterschieden werden. Weiterhin wird für die verschiedenen IMF die Möglichkeit der Reaktivitätskontrolle anhand der abbrandabhängigen Bor-Wirksamkeit untersucht.

In Bezug auf Sicherheitsaspekte beim Einsatz von IMF werden weiterhin wichtige Reaktivitätskoeffizienten für ausgewählte IMF-Zusammensetzungen untersucht und mit Werten für verschiedene MOX-Brennstoffe verglichen.

Bezogen auf die nukleare Nichtverbreitung sind intrinsische Eigenschaften des verbleibenden Brennstoffs von besonderer Bedeutung. Hierzu ist ebenfalls einerseits der erreichbare Abbrand ein wesentlicher Indikator, da er die Eigenschaften des abgebrannten Brennstoffs und damit das Potenzial zur quantitativen Beseitigung von Plutonium festlegt. Daraus lassen sich dann jedoch weitere, für eine Bewertung der Nichtverbreitungsaspekte wesentliche Größen ableiten. Diese umfassen

- den umgesetzten Anteil des anfänglichen Plutoniums,
- die im abgebrannten Brennstoff verbleibende Konzentration des Plutoniums,
- die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums und daraus resultierend
 - die Wärmerate des verbleibenden Plutoniums sowie
 - die Neutronenrate aus Spontanspaltungen des Plutoniums.

Kapitel 4

Methodik der Untersuchung von uranfreien Brennstoffen

Der wesentliche Bestandteil der Untersuchung uranfreier Brennstoffe (IMF) im Rahmen dieser Arbeit besteht in der Durchführung und Auswertung von Abbrandrechnungen zur Bestimmung der zeitabhängigen Nuklidzusammensetzung von IMF sowie der anschließenden Bestimmung von wichtigen neutronenphysikalischen Parametern (Reaktivitätskoeffizienten), welche zur sicherheitstechnischen Bewertung von IMF herangezogen werden können.¹ Im Folgenden sollen die dabei verwendeten Methoden bzw. Programmsysteme vorgestellt und die bei den Berechnungen zugrundegelegten Parameter definiert werden. Hierzu wird zunächst das Programmsystem MCMATH vorgestellt, welches an der TU-Darmstadt entwickelt (Pistner, 1998) und im Rahmen dieser Arbeit fortgeschrieben und aktualisiert worden ist. MCMATH steht dabei für die Kopplung des zur Bestimmung von Neutronenspektren und effektiven Wirkungsquerschnitten verwendeten Neutronentransportprogramms MCNP (siehe Abschnitt 4.2) mit *Mathematica* (Wolfram, 1999), welches für die Lösung der Abbrandgleichungen und zur allgemeinen Datenverwaltung eingesetzt wird (siehe Abschnitt 4.3). Neben der Möglichkeit von Zell-Abbrandrechnungen umfasst MCMATH mittlerweile auch die Berechnung von wesentlichen Reaktivitätskoeffizienten auf der Basis von MCNP. Die Umsetzung dieser Rechnungen im Rahmen von MCMATH wird in Abschnitt 4.4 beschrieben. Im letzten Abschnitt wird das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Programmsystem MCMATH knapp mit anderen, heute international verwendeten Programmsystemen, welche MCNP zur Berechnung des Zellabbrands einsetzen, verglichen. Eine umfangreiche Validierung von MCMATH wird dann im nächsten Kapitel vorgenommen.

¹Andere relevante Fragen, insbesondere nach den Bestrahlungseigenschaften von spezifischen uranfreien Brennstoffen oder auch der thermodynamischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Kühlmittel, werden im Rahmen dieser Arbeit nicht untersucht.

4.1 Grundlagen und Begriffe

Die im Rahmen dieses Kapitels vorgestellten Grundlagen der Reaktorphysik orientieren sich wesentlich an Ziegler (1983, 1984) sowie Emendörfer und Höcker (1982, 1993). Es sei an dieser Stelle auch nochmals auf Pistner (1998, Kap. 2 u. 3) verwiesen, wo bereits die wesentlichen Grundlagen von Zell-Abbrandrechnungen diskutiert wurden.

4.1.1 Abbrand- und Neutronentransportgleichung

Die Änderung der Brennstoffzusammensetzung bei der Bestrahlung im Reaktor wird wesentlich durch zwei grundlegende Gleichungen bestimmt. So tragen zur Änderung der Konzentration eines Nuklids im Laufe der Zeit verschiedene neutroneninduzierte Prozesse wie (n,γ)-, (n,f)- oder (n,2n)-Reaktionen, aber auch radioaktive Zerfälle bei. Die zeitliche Änderung der Konzentration N^i eines Nuklids i wird daher durch die orts- und zeitabhängige Abbrandgleichung

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(\vec{r}, t) = & - \left[\int_0^\infty dE \sigma_a^i(E) \phi(E, \vec{r}, t) + \lambda^i \right] N^i(\vec{r}, t) \\ & + \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(\vec{r}, t) \int_0^\infty dE \sigma_a^j(E) \phi(E, \vec{r}, t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (4.1)$$

bestimmt.² Hier tragen zur Abnahme des Nuklids i alle Neutroneneinfangsprozesse mit Wirkungsquerschnitt σ_a^i sowie die radioaktiven Zerfälle mit einer Zerfallskonstanten λ^i bei (erster Term auf der rechten Seite), zur Zunahme des Nuklids i führen Neutroneneinfänge sowie Zerfälle im Nuklid j , welche mit einer Wahrscheinlichkeit f^{ij} respektive l^{ij} das Nuklid i bilden (zweiter Term). Die Wahrscheinlichkeiten f^{ij} bestimmen sich dabei aus dem Verhältnis der zur Bildung des Nuklids i führenden Reaktion ($\sigma_{(j \rightarrow i)}^j$) zur Gesamtwahrscheinlichkeit für Neutronenabsorption im Nuklid j :

$$f^{ij}(\vec{r}, t) = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_{(j \rightarrow i)}^j(E) \phi(E, \vec{r}, t)}{\int_0^\infty dE \sigma_a^j(E) \phi(E, \vec{r}, t)}.$$

Durch die zeitliche Änderung des Neutronenspektrums $\phi(E, \vec{r}, t)$ sind die Koeffizienten f^{ij} selbst zeitabhängig. Die l^{ij} sind die relativen Wahrscheinlichkeiten für das Eintreten eines bestimmten radioaktiven Zerfalls im Nuklid j , welcher zur Produktion von Nuklid i führt.

Während die mikroskopischen Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ für viele Nuklide mit großer Genauigkeit vermessen sind und daher als bekannt angesehen werden können, ist die Energieverteilung der Neutronen in hohem Maße von der Zusammensetzung des Brennstoffs und der geometrischen Anordnung von Brennstoff und Moderator abhängig. In die

²Dabei umfasst der in die Abbrandgleichung eingehende Absorptionsquerschnitt σ_a alle Neutronenreaktionen, die zu einer Änderung des mit dem Neutron interagierenden Kerns führen, d. h. $\sigma_a = \sigma_f + \sigma_\gamma + \sigma_{(n,2n)} + \dots$. Oft wird σ_a nur als die Summe aus σ_f und σ_γ definiert. Nicht zu σ_a tragen elastische und inelastische Streuung von Neutronen bei.

Abbrandgleichung geht daher wesentlich der energieabhängige Neutronenfluss $\phi(E, \vec{r}, t)$ ein. Eine wesentliche Aufgabe zur Lösung der Abbrandgleichungen stellt daher die Bestimmung von $\phi(E, \vec{r}, t)$ dar. Für den zeit- und energieabhängigen Neutronenfluss gilt die Boltzmann Neutronentransportgleichung

$$\begin{aligned} \frac{1}{v(E)} \frac{d\phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{dt} = & -\vec{\Omega} \times \nabla \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \\ & -\Sigma_t(\vec{r}, E, \vec{\Omega})\phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \\ & +\chi(E) \int_{E'} dE' \int_{\vec{\Omega}'} d\vec{\Omega}' \nu \Sigma_f(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) \\ & + \int_{E'} dE' \int_{\vec{\Omega}'} d\vec{\Omega}' \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t). \end{aligned} \quad (4.2)$$

Die zeitliche Änderung des Neutronenflusses ist demnach durch vier Terme bestimmt. Zunächst nimmt der Fluss am Ort \vec{r} durch Leakage ab (erster Term). Weiterhin werden Neutronen der Energie E und der Bewegungsrichtung $\vec{\Omega}$ gestreut, wobei sie entweder ihre Energie oder ihre Bewegungsrichtung ändern (zweiter Term). Als dritter Term ist der Zugewinn an Neutronen der Energie E durch Spaltung mit einer Energieverteilung der Spaltungsneutronen $\chi(E)$, ausgelöst durch Neutronen der Energie E' , aufgeführt. Zuletzt gibt es noch eine Zunahme an Neutronen der Energie E und Bewegungsrichtung $\vec{\Omega}$ durch eine Streuung eines Neutrons mit einer anderen Energie E' oder Bewegungsrichtung $\vec{\Omega}'$. Die Energieverteilung der Neutronen, welche sich im Brennelementgitter eines LWR für zwei verschiedene, typische Brennstoffzusammensetzungen ergibt, ist exemplarisch in Abb. 4.1 dargestellt.

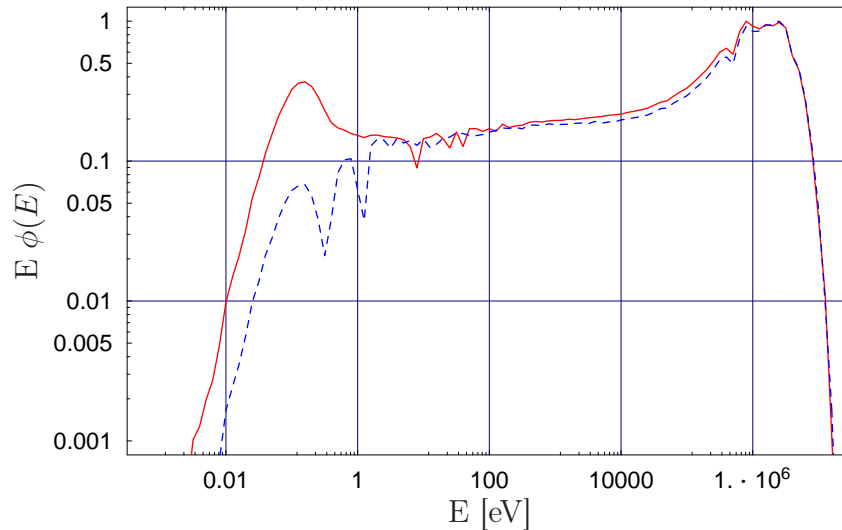


Abbildung 4.1: Die Energieverteilung der Neutronen für einen typischen Uran-Brennstoff der Anreicherung 3,9% (—) und einen uranfreien Brennstoff mit 0,7 g/cm³ Plutonium (— —) zu Beginn des Abbrandes. Beide Spektren sind im Maximum auf einen Wert von eins normiert, Absolutwerte ergeben sich aus der im Reaktor eingestellten Leistungsdichte.

In dieser Darstellung sind die drei wesentlichen Bereiche der Energieverteilung der Neutronen gut erkennbar. Die aus der Spaltung freigesetzten Neutronen weisen hohe Energien

im Bereich um ein MeV auf. Bei der Abbremsung durchlaufen die Neutronen den Bereich mittlerer Energien (epithermischer Bereich, typischerweise definiert als der Bereich zwischen 0,5 eV und 1 MeV). Hier zeigen die Wirkungsquerschnitte der verschiedenen Nuklide ausgeprägte Resonanzen, welche bei bestimmten scharfen Energien zu einem Einbruch des Neutronenflusses führen (Resonanzselbstabschirmung). In der Abbildung ist die Absenkung des Neutronenflusses bei Resonanzen des Urans und Plutoniums für niedrige Energien noch gut erkennbar (Pu-239 weist eine ausgeprägte Resonanz bei 0,3 eV auf, beim Uran-Brennstoff ist ebenfalls die erste Resonanz des U-238 bei 4,39 eV sichtbar), bei höheren Energien ist die Energieauflösung in der Abbildung nicht ausreichend, um die Fluktuationen im Neutronenfluss zu erkennen. Schließlich erreichen die Neutronen thermische Energie im Bereich von 0,0253 eV.³ Für einen typischen Uran-Brennstoff baut sich bei dieser Energie der Neutronenfluss auf, da die Neutronen im Uran erst nach einiger Zeit eingefangen werden. Bei dem hier dargestellten uranfreien Brennstoff kommt es aufgrund der hohen Absorptionsquerschnitte der Pu-Isotope für thermische Neutronen demgegenüber bereits zu einer frühzeitigen Absorption, eine vollständige Thermalisierung wird hier nicht erreicht, so dass der Fluss bei thermischen Energien kein Maximum aufweist.

Da die Transportgleichung für die Neutronen durch die Abhängigkeit der makroskopischen Wirkungsquerschnitte $\Sigma_x^i(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \sigma_x^i(E, t) \cdot N^i(\vec{r}, t)$ von den Nuklidkonzentrationen $N^i(\vec{r}, t)$ abhängt, stellen die Gleichungen 4.1 und 4.2 ein gekoppeltes System von Differenzial- bzw. Integralgleichungen dar, welches im Rahmen von MCMATH iterativ gelöst wird.

4.1.2 Effektive Wirkungsquerschnitte

Durch Einführen eines *effektiven mikroskopischen Wirkungsquerschnitts* für eine beliebige Neutronenreaktion x als

$$\sigma_x^i(\vec{r}, t) = \frac{\int_0^\infty dE \sigma_x^i(E) \phi(E, \vec{r}, t)}{\phi_{tot}(\vec{r}, t)} \quad (4.3)$$

mit dem *totalen Neutronenfluss*

$$\phi_{tot}(\vec{r}, t) = \int_0^\infty dE \phi(E, \vec{r}, t)$$

geht Gl. (4.1) über in

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(\vec{r}, t) = & - \left[\sigma_a^i(\vec{r}, t) \phi_{tot}(\vec{r}, t) + \lambda^i \right] N^i(\vec{r}, t) \\ & + \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(\vec{r}, t) \sigma_a^j(\vec{r}, t) \phi_{tot}(\vec{r}, t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(\vec{r}, t). \end{aligned} \quad (4.4)$$

Während der mikroskopische Wirkungsquerschnitt eines Nuklids für eine gegebene Reaktion x (Absorption, Spaltung, Streuung etc.) eine bekannte Funktion der Neutronenenergie

³Eine Energie E von 0,0253 eV entspricht einer absoluten Temperatur von 293 K bzw. einer Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/s.

E darstellt, geht beim Übergang zum effektiven Wirkungsquerschnitt durch eine Mittelung über die Energieverteilung des lokalen Neutronenspektrums die Energieabhängigkeit in eine Abhängigkeit von Ort und Zeit über.

Die Übergangswahrscheinlichkeiten $f^{ij}(\vec{r}, t)$ bestimmen sich nun unmittelbar aus dem Verhältnis des zur Produktion des Nuklids j führenden effektiven Wirkungsquerschnitts, z. B. $\sigma_\gamma(\vec{r}, t)$ oder $\sigma_{(n,2n)}(\vec{r}, t)$, zum Absorptionsquerschnitt $\sigma_a(\vec{r}, t)$.

4.1.3 Totaler Neutronenfluss und Leistungsdichte

Für einen kritischen Reaktor ist die Höhe des totalen Neutronenflusses im Prinzip beliebig einstellbar.⁴ Durch Festlegung der angestrebten Leistungsdichte wird daher die Höhe des totalen Neutronenflusses bestimmt. Dieser hängt mit der lokalen Leistungsdichte $P(\vec{r}, t)$ über

$$P(\vec{r}, t) = \left(\sum_j E^j \sigma_f^j(\vec{r}, t) N^j(\vec{r}, t) \right) \phi_{tot}(\vec{r}, t) \quad (4.5)$$

zusammen, da die bei einer Spaltung freigesetzte Energie zum größten Teil über die kinetische Energie der Spaltprodukte lokal deponiert wird. Dabei ist E^j die bei einer Spaltung des Nuklids j freigesetzte Energie.⁵

In Pistner (1998) wurden zur Berechnung der pro Spaltung freigesetzten Energie tabellierte Werte gemäß OECD/NEA (1995a) für die wesentlichen Spaltstoffe verwendet (siehe Tabelle 4.1). Mittlerweile erfolgt in MCMATH die Bestimmung der E^j durch eine Näherungsformel

$$E(Z, A) = 1,29927 \times 10^{-3} \text{ MeV} (Z^2 \cdot A^{0,5}) + 33,12 \text{ MeV}, \quad (4.6)$$

die auch in anderen Programmen für die Durchführung von Abbrandrechnungen wie ORIGEN zur Berechnung der Spaltenergiefreisetzung verwendet wird und mit guter Übereinstimmung durch eine Anpassung an experimentelle Werte gewonnen wurde (Croff, 1980).

⁴Aufgrund der Kopplung zwischen Neutronenfluss und freigesetzter Spaltenergie wird eine Obergrenze des totalen Flusses durch die maximal handhabbare Leistungsdichte vorgegeben.

⁵Neben der unmittelbar bei der Spaltung freigesetzten Energie führt auch der Einfang der nicht für die Aufrechterhaltung der Kettenreaktion benötigten Neutronen zu einer Energiefreisetzung. Diese muss bei der Angabe von E^j geeignet berücksichtigt werden. Demgegenüber wird die mit den freiwerdenden Neutrinos verbundene Energie nicht lokal deponiert und trägt daher nicht zu E^j bei.

Nuklid	E_f^i (OECD/NEA 1995a) [MeV]	E_f^i (Croff, 1980) [MeV]
^{233}U	199,29	200,98
^{234}U	198,30	201,34
^{235}U	201,70	201,70
^{236}U	200,80	202,06
^{238}U	205,00	202,77
^{239}Pu	210,00	210,60
^{240}Pu	207,79	210,97
^{241}Pu	212,40	211,34
^{242}Pu	208,62	211,71
^{242m}Am	215,00	215,53
^{246}Cm		220,54

Tabelle 4.1: Wesentlich zur Energieerzeugung beitragende Nuklide sowie die pro Spaltung freigesetzte effektiv nutzbare Energie E_f^i für Nuklid i nach OECD/NEA (1995a) und Croff (1980).

4.2 Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten in MCNP

„MCNP (and any general Monte Carlo Code) is little more than a collection of random decision points with some simple arithmetic in between.“

MCNP Handbuch, (Briesmeister, 2000, S. 2–1)

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Programmsystem für Zell-Abbrandrechnungen basiert auf einer iterativen Kopplung der Berechnung von effektiven Wirkungsquerschnitten bei vorgegebener Nuklidzusammensetzung in MCNP und der Lösung der Abbrandgleichungen bei vorgegebenen und als schrittweise konstant angenommenen effektiven Wirkungsquerschnitten in *Mathematica*.

4.2.1 Das Neutronen-Transportprogramm MCNP

Bei MCNP (Monte-Carlo N-Particle) handelt es sich um ein vielseitig verwendbares, auf der Monte-Carlo Methode basierendes Computerprogramm zur Berechnung von Transportvorgängen von Neutronen, Photonen und Elektronen in beliebigen dreidimensionalen Geometrien (Briesmeister, 2000).⁶ Im Gegensatz zu sogenannten deterministischen Transportprogrammen, welche eine analytische Lösung der Boltzmann-Transportgleichung durch

⁶Mit der Version MCNPX steht seit wenigen Jahren auch eine Programmversion zur Modellierung von Hochenergie-Transportvorgängen zur Verfügung. Diese umfasst zusätzlich den Transport von Protonen

geeignete Näherungen und numerische Methoden verfolgen, beruht das Monte-Carlo Verfahren auf der Simulation der physikalischen Vorgänge für die einzelnen Teilchen und erzielt Aussagen zu integrierten Größen wie effektiven Wirkungsquerschnitten durch eine statistische Mittelung über eine hinreichend große Anzahl an untersuchten Teilchen.

Dazu erstellt der Benutzer eine Eingabedatei, in welcher er mittels elementaren zur Verfügung stehenden Flächen komplexe dreidimensionale Geometrien aufbauen kann. Die darin enthaltenen Volumina, sogenannte Zellen, können mit verschiedenen Materialien gefüllt werden, deren zugehörige energieabhängigen Wirkungsquerschnitte in verschiedenen Bibliotheken für MCNP zu Verfügung stehen (siehe Abschnitt 4.2.2 und Anhang F). Neben der vorliegenden Geometrie können in MCNP Teilchenquellen hinsichtlich ihrer räumlichen und energetischen Verteilung definiert werden. Alternativ zu konstanten Teilchenquellen können im Rahmen von Kritikalitätsberechnungen (s. u.) dynamisch neue Neutronenquellverteilungen anhand der in einer Neutronengeneration ausgelösten Spaltungen bestimmt werden. Schließlich kann der Benutzer die ihn interessierenden physikalischen Größen in der Form sogenannter „Tallies“ abfragen. Mittels solcher Tallies können verschiedene physikalische Größen ermittelt werden. Hierzu zählt insbesondere der (energieabhängige) Neutronenfluss in einer Zelle. Dieser wird mittels einer Weglängenabschätzung (*Track Length Estimate*) nach

$$\frac{1}{V} \int_V \int_E \int_t \phi(E, \vec{r}, t) dt dE dV = \frac{1}{V} \int_V \int_E \int_s n(\vec{r}, E, t) ds dE dV = \frac{T_l}{V}$$

ermittelt (Briesmeister, 2000, S. 2-79). Dabei wird dieses Integral bestimmt, indem alle innerhalb einer Zelle von Neutronen zurückgelegten Weglängen T_l aufsummiert werden.

Dieses sogenannte Flusstally (F4-Tally) kann durch die Verwendung von *Multiplikatorkarten* zur Bestimmung von Reaktionsraten bestimmter Nuklide erweitert werden. So kann bei der Berechnung von Tallies der Fluss mit einer beliebigen Kombination energieabhängiger Größen $R(E)$ gewichtet werden, wodurch

$$\int \phi(E) dE \quad \text{in} \quad \int R(E) \phi(E) dE$$

übergeht. Die energieabhängigen Größen müssen MCNP in der Form von Datenbibliotheken zur Verfügung gestellt werden. Wird für $R(E)$ beispielsweise $\sigma_x^i(E)$ gewählt, so ergibt sich die Reaktionsrate einer Kernreaktion x des Nuklids i .⁷

Schließlich kann mittels MCNP direkt die Kritikalität eines zu untersuchenden Systems bestimmt werden. Hierzu werden sukzessive Neutronengenerationen mit einer jeweils fest vorgegebenen Anzahl an Neutronen untersucht. Das Verhältnis der pro Generation neu erzeugten Spaltneutronen zu den gestarteten Neutronen ergibt direkt die Kritikalität k_{eff} des Systems und damit auch die zugehörige Reaktivität $\rho_{eff} = (k_{eff} - 1)/k_{eff}$.⁸

und weiteren geladenen Teilchen und erweitert mittels tabellierter Wirkungsquerschnitte und physikalischer Modelle den für Untersuchungen zur Verfügung stehenden Energiebereich bspw. bei Neutronen auf bis zu 150 MeV (Waters (ed.), 2002).

⁷Dabei werden die in MCNP bestimmten Tallies auf jeweils ein aus einer Quelle gestartetes Teilchen normiert. Die absoluten Werte des Neutronenflusses bzw. der Reaktionsraten einzelner Nuklide ergeben sich dann nach Normierung mittels Gl. 4.5.

⁸Dabei kann im Allgemeinen zwischen der effektiven Reaktivität eines realen Systems ρ_{eff} unter

4.2.2 Energieabhängige Wirkungsquerschnitte in MCNP

Für die in MCNP simulierten Materialien müssen die verwendeten energieabhängigen Wirkungsquerschnitte in der Form geeigneter Bibliotheken zur Verfügung stehen. Dabei basiert ein großer Teil der heute für MCNP erhältlichen Bibliotheken auf Daten der Evaluated Nuclear Data File (ENDF)-Bibliothek (Cross Section Evaluation Working Group, 2001). Einen Überblick der wichtigsten Bibliotheken und der in ihnen vorhandenen Nuklide gibt Anhang F.

Für die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Nuklide sind die in verschiedenen Distributionen vorliegenden temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitte in Anhang F, Tabelle F.1 und F.2 zusammengefasst. Es wird deutlich, dass die in Gil (2001) enthaltenen Nuklide praktisch alle von MCMATH berücksichtigten Nuklide bei drei relevanten Temperaturen (300 K, 600 K und 900 K) umfassen. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen basieren auf dieser Bibliothek, sofern nicht explizit darauf hingewiesen wird, dass andere Bibliotheken eingesetzt werden, so z. B. diejenige von Abdelrahman und Abdurrahman (1999) oder Kosako et al. (2003).

Für die Bestimmung der im Rahmen von Abbrandrechnungen relevanten effektiven Wirkungsquerschnitte werden in MCNP für alle betrachteten Nuklide die in Tabelle 4.2 angegebenen Reaktionen ausgewertet.

Nuklidgruppe	Berücksichtigte Reaktion	ENDF-Reaktionsnummer
Aktinide	(n,f)	−6
	(n,2n)	16
	(n,3n)	17
	(n,γ)	102
Spaltprodukte ⁹	(n,γ)	102

Tabelle 4.2: Im Rahmen von MCMATH berücksichtigte Neutronenreaktionen sowie zugehörige Reaktionsnummer in MCNP gemäß Cross Section Evaluation Working Group (2001); Briesmeister (2000).

4.2.3 Zellrechnungen

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Abbrandrechnungen werden die effektiven Wirkungsquerschnitte auf der Basis von Einheitszellrechnungen bestimmt. Da

Berücksichtigung seiner endlichen Ausdehnung und der damit verbundenen Leckageverluste, und einer infiniten Reaktivität ρ_∞ eines idealisiert unendlich ausgedehnten Systems ohne Leckageverluste unterschieden werden (siehe auch Abschnitt 4.2.3).

⁹Bei der Verwendung von Bor als brennbarem Neutronengift wird darüber hinaus der (n,α)-Querschnitt des ¹⁰B mit der Reaktionsnummer 107 erfasst.

ein typisches Brennelement bei Druckwasserreaktoren (DWR) aus bspw. 17×17 Brennstäben im regelmäßigen Gitter aufgebaut ist, wird dabei die periodische Struktur dieses Brennstabgitters ausgenutzt und als Einheitszelle ein einzelner Brennstab, welcher aus Brennstoffmatrix und umgebendem Hüllrohr aufgebaut ist, mit zugehörigem Moderator verwendet. Aufgrund der im Verhältnis zur freien Weglänge der Neutronen sehr großen Abmessungen des Reaktorkerns kann weiterhin eine unendlich große Ausdehnung des durch solche Einheitszellen aufgebauten periodischen Gitters angenommen werden.¹⁰ Auf der Basis der für einen bestimmten Abbrandzeitpunkt vorliegenden mittleren Brennstoffzusammensetzung $N^i(t)$ gewinnt man durch eine solche Zellrechnung in MCNP die über einen Brennstab gemittelten effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma(t)$. Damit geht Gl. 4.4 in eine ortsunabhängige Form über:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} N^i(t) = & - \left[\sigma_a^i(t) \phi_{tot}(t) + \lambda^i \right] N^i(t) \\ & + \sum_{j \neq i} \left[f^{ij}(t) \sigma_a^j(t) \phi_{tot}(t) + l^{ij} \lambda^j \right] N^j(t). \end{aligned} \quad (4.7)$$

Im Rahmen dieser Arbeit werden für die geometrischen Abmessungen der Brennstoff-Einheitszelle grundsätzlich die von OECD/NEA (1995a) definierten Werte zugrundegelegt. Danach weist der Brennstab einen Innenradius von 0,4095 cm und einen Außenradius von 0,475 cm auf, die Brennstoffzelle hat eine Kantenlänge von 1,3133 cm (siehe Abbildung 4.2). In axialer Richtung wird eine unendliche Ausdehnung angenommen. Weiterhin

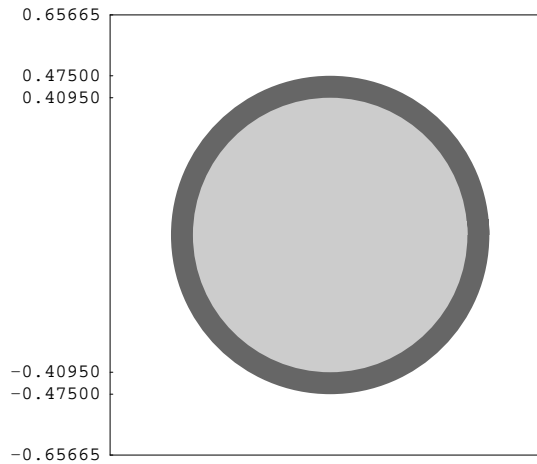


Abbildung 4.2: Einheitszelle.

wird aufgrund der zur Verfügung stehenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken einheitlich eine Brennstofftemperatur von 900 K und eine Temperatur der Brennstabhüllrohre und des Moderators von 600 K angenommen.

¹⁰Für eine genauere Diskussion der Ortsabhängigkeit der Abbrandgleichungen siehe auch Pistner (1998, Kap. 4.1).

Als Brennstabhüllrohrmaterial wird natürliches Zirkonium bei einer Dichte von $6,95 \text{ g/cm}^3$ angesetzt. Für den Moderator wird Wasser mit einer Dichte von $0,713 \text{ g/cm}^3$ zugrundegelegt.¹¹ Der in der Realität über den Abbrand variierenden Bor-Konzentration wird durch Verwendung einer mittleren Konzentration von 500 ppm Bor Rechnung getragen. Für die bei der Verwendung von MCNP notwendigen Umrechnung von Dichten in Nuklidkonzentrationen werden im Rahmen von MCMATH atomare Massen gemäß Audi und Wapstra (1995) verwendet. Die sich für Moderator und Brennstabhüllrohr ergebenden Nuklidkonzentrationen wurden bereits in Tabelle 2.5 zusammengefasst.

4.3 Iterative Lösung der Abbrandgleichungen mit *Mathematica*

Insgesamt werden in MCMATH gegenwärtig 46 Aktinide und 153 Spaltprodukte explizit behandelt (für eine detaillierte Liste der gegenwärtig berücksichtigten Nuklide siehe Anhang F, Tabelle F.1 und F.2). Dabei werden neben den effektiven Wirkungsquerschnitten, welche mit MCNP berechnet werden, alle radioaktiven Zerfälle (d. h. α , β^- , β^+ sowie elektromagnetische Übergänge zwischen isomeren Zuständen) gemäß Korea Atomic Energy Research Institute (2004) berücksichtigt, deren Daten in der Form spezieller Eingabedateien bereitgestellt wurden. Bei der Berechnung der zeitabhängigen Nuklidzusammensetzungen können die Gruppe der Aktinide und diejenige der Spaltprodukte getrennt behandelt werden. Dabei tragen die Aktinide durch Spaltung zum Aufbau der Spaltprodukte bei, was durch die Berücksichtigung eines sogenannten Yieldvektors in der Abbrandgleichung erfasst werden kann (siehe Abschnitt 4.3.2). Die Spaltprodukte haben demgegenüber keine unmittelbare Auswirkung auf die Änderung der Nuklidzusammensetzung der Aktinide. Ihr Einfluss beschränkt sich auf die Auswirkungen bei der Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP. Daher können zunächst die Abbrandgleichungen für die Gruppe der Aktinide betrachtet werden.

4.3.1 Aktinide

Zur Lösung der Abbrandgleichungen 4.7 wird im weiteren eine Unterteilung des gesamten Abbrands in kürzere Zeitintervalle $[t_k, t_{k+1}]$ vorgenommen. Insgesamt kann mit Rechensystemen zur Bestimmung der Brennstoffzusammensetzung auf Grund von systematischen Unsicherheiten nur eine Genauigkeit im Bereich von einigen Prozent erreicht werden (siehe auch Kapitel 5).¹² Entsprechend soll, um einen vertretbaren Rechenzeitaufwand zu gewährleisten, die statistische Genauigkeit bei der Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte mit MCNP etwa 1–3% betragen. Die Länge der Abbrandintervalle wird entsprechend so gewählt, dass die Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte während

¹¹Dabei entspricht diese Dichte typischen Bedingungen in modernen DWR.

¹²Zu solchen systematischen Unsicherheiten tragen bspw. die pro Spaltung freigesetzte effektiv nutzbare Energie E^j nach Tabelle 4.1 oder auch Ungenauigkeiten in den zugrundegelegten mikroskopischen Wirkungsquerschnitten $\sigma(E)$ bei.

eines solchen Intervalls ebenfalls nicht mehr als 1–3% beträgt (siehe auch Abschnitt 4.3.3).

Für die Gruppe der Aktinide können die Abbrandgleichungen mit den bisher gemachten Vereinfachungen in die Form

$$\frac{d}{dt}\vec{N}(t) = M \cdot \vec{N}(t) \quad (4.8)$$

gebracht werden.¹³ Dabei ist die Übergangsmatrix M durch

$$M^{ij} = -\left(\sigma_{a,k}^i \bar{\phi}_k + \lambda^i\right) \delta^{ij} + \sigma_{a,k}^j \bar{\phi}_k f^{ij} + \lambda^j l^{ij} \quad (4.9)$$

gegeben.¹⁴ Die $\sigma_{a,k}^i$ entsprechen den für das Zeitintervall k mit MCNP bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitten. Dabei findet die Berechnung der Wirkungsquerschnitte mit den Nuklidzusammensetzung $\vec{N}(t_k)$ statt.

Der mittlere Fluss $\bar{\phi}_k$ wird ebenfalls iterativ bestimmt. Hierzu werden die Abbrandgleichungen mit einem vorgegebenem Wert für $\bar{\phi}_k'$ gelöst. Danach kann in *Mathematica* durch Integration über Gl. 4.5 die während des Zeitintervalls freigesetzte mittlere Leistung \bar{P}_k' bestimmt werden. Nun wird der anfänglich gewählte Fluss mit einem Faktor P/\bar{P}_k' gewichtet, wobei P der vorgegebenen mittleren Leistung entspricht. Diese Anpassung wird so lange wiederholt, bis eine gewünschte Genauigkeit in der freigesetzten mittleren Leistung erreicht ist.¹⁵

Eine analytische Lösung des Gleichungssystems 4.8 kann nun mit *Mathematica* bestimmt werden. Für das homogene Differenzialgleichungssystem erster Ordnung ist die allgemeine Lösung durch

$$\vec{N}(t) = \sum_i c_i \vec{e}_i \exp(\epsilon_i t)$$

gegeben. Dabei stellen ϵ_i und \vec{e}_i die zugehörigen Eigenwerte und Eigenvektoren der Matrix M dar, die c_i sind durch die Anfangsbedingung $\vec{N}(t_k) = \sum_i c_i \vec{e}_i$ festgelegt. Die Berechnung erfolgt entsprechend in *Mathematica* durch die Routine¹⁶

```
e = Eigensystem[M];
c = LinearSolve[Transpose[e[[2]]], N(t_k)];
N(t) =
Sum[c[[i]] e[[2,i]] Exp[e[[1,i]] t], {i,1,Length[M]}].
```

¹³Dabei dient die zur Vereinfachung verwendete „Vektor“-Schreibweise lediglich einer kompakten Notation, ohne dass durch die Zusammenfassung der einzelnen Funktionen $N^i(t)$ zu einem „Vektor“ $\vec{N}(t)$ weitere mathematische Eigenschaften eines Vektorraums behauptet werden sollen.

¹⁴Hier ist δ^{ij} das Kronecker-Symbol, welches für $i = j$ den Wert Eins, ansonsten den Wert Null annimmt.

¹⁵Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine maximale relative Abweichung von der mittleren Leistung von 10^{-6} vorgegeben.

¹⁶Eine Lösung des Gleichungssystems könnte auch direkt durch die Funktion **MatrixExp** in *Mathematica* mittels $N(t) = \text{MatrixExp}[M t] N(t_k)$ bestimmt werden. Allerdings ergaben sich in früheren Versionen von *Mathematica* numerische Schwierigkeiten aufgrund der sehr schwachen Besetzung und dem großen dynamischen Bereich der Koeffizienten in der Matrix. Daher wurde die hier dargestellte Umsetzung gewählt.

Damit stehen die zeitabhängigen Nuklidkonzentrationen der Aktinide für einen Abbrandschritt zur Verfügung, insbesondere können damit auch die Nuklidkonzentration für das Ende des Abbrandschritts bestimmt werden, welche wiederum als Ausgangskonzentration zur Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP für den nächsten Zeitschritt dienen.

4.3.2 Spaltprodukte

Für die Konzentrationsänderung der Spaltprodukte \vec{P} gilt

$$\frac{d}{dt}\vec{P}(t) = M \cdot \vec{P}(t) + \vec{Y}(t), \quad (4.10)$$

wobei die Übergangsmatrix wiederum durch Gl. 4.9 gegeben ist. Aufgrund der Trennung in die Gruppe der Aktinide und der Spaltprodukte ergibt sich hier jedoch mit dem Yieldvektor $\vec{Y}(t)$ ein inhomogener Term, der sich aus den Beiträgen der Aktinide zum Aufbau der Spaltprodukte ergibt. Der Yieldvektor $\vec{Y}(t)$ wird während eines Zeitintervalls durch einen zeitlich gemittelten Yieldvektor \bar{Y}_k angenähert, dessen Komponenten sich gemäß

$$\bar{Y}_k^i = \frac{1}{t_{k+1} - t_k} \sum_j Y^{ij} \int_{t_k}^{t_{k+1}} dt \sigma_{f,k}^j \bar{\phi}_k N^j(t) = \frac{1}{t_{k+1} - t_k} \sum_j Y^{ij} S_k^j \quad (4.11)$$

ergeben. Hier umfasst die Summe über j alle Aktinide, welche zur Spaltung beitragen. Die Y^{ij} sind spaltnuklidabhängige Yieldfaktoren, welche die Wahrscheinlichkeit angeben, dass bei einer Spaltung des Nuklids j das Spaltprodukt i gebildet wird (für die kumulativen Yields bei einer thermischen Spaltung von Pu-239 siehe Abbildung 4.3). Die Zahl der Spaltungen S_k^j eines Spaltnuklids j kann nach Lösung der Abbrandgleichungen für die Aktinide direkt in *Mathematica* bestimmt werden.

Neben den bereits in Pistner (1998) erfassten Ausgangsnukliden ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{242m}Am wurden im Rahmen dieser Arbeit noch die Yieldfaktoren Y^{ij} für die Nuklide ^{230}Th , ^{237}Np und ^{245}Cm aus der Datenbank JEF-2.2 (OECD/NEA, 2001) zur Bestimmung des Yieldvektors ergänzt. Während insbesondere ^{245}Cm bei der Berechnung uranfreier Brennstoffe mit hohen Abbränden zunehmendes Gewicht erhält (siehe hierzu Tab. 4.3), spielt Thorium bei der Untersuchung von uranfreien Brennstoffen auf Thorium-Basis eine wesentliche Rolle. Neptunium ist für die Untersuchung von Konzepten der Transmutation minorer Aktinide von zentraler Bedeutung. Die zuletzt genannten Brennstoff-Typen werden allerdings im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht.

Lösung der Abbrandgleichung für die Spaltprodukte

Die entstehenden Spaltprodukte weisen typischerweise einen hohen Neutronenüberschuss auf und wandeln sich daher in einer Reihe von β^- -Zerfällen entlang einer Isobaren-Zerfallskette in Richtung der Stabilitätslinie um, bis sie in stabile Isotope übergehen. Dabei können sich durch Neutroneneinfänge Übergänge zu sukzessive schwereren Isotopen

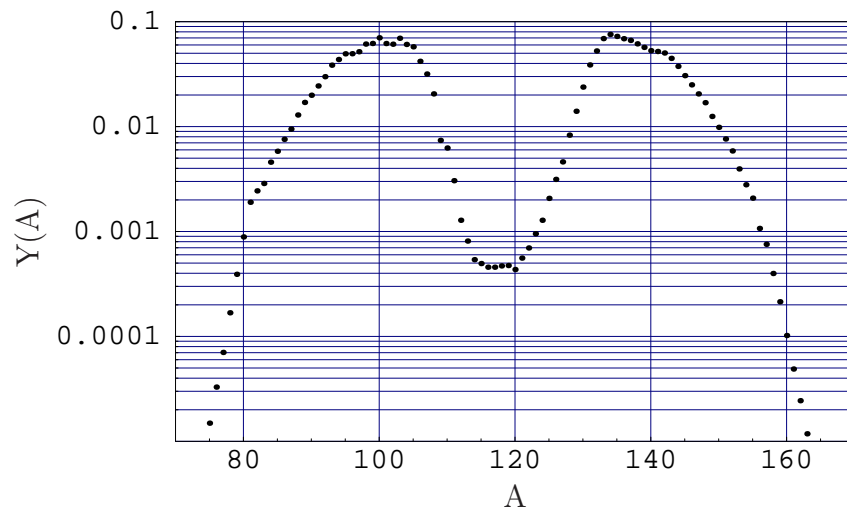


Abbildung 4.3: Kummulativer Yield $Y(A)$ für Isobare mit Massenzahlen A zwischen 75 und 165 für eine thermische Spaltung in Pu-239. Die Daten wurden mittels Nuclides.net (Magill, 1999) aus JEF 2.2 gewonnen.

Nuklid	ρ [10^{24} at/cm ³]	$\sigma_{n,fis}$ [barn]	$\Sigma_{n,fis}$ [cm ⁻¹]	Anteil Spaltung [%]
Total	4,5953e-04	3,0333e+01	1,3939e-02	100,0
Pu-241	7,2128e-05	1,5747e+02	1,1358e-02	81,4
Pu-239	1,2383e-05	1,4815e+02	1,8345e-03	13,2
Cm-245	2,1887e-06	1,9435e+02	4,2539e-04	3,1
Pu-242	1,5308e-04	4,1005e-01	6,2770e-05	0,45
Pu-240	1,1523e-04	5,4380e-01	6,2660e-05	0,45

Tabelle 4.3: Die fünf bei EOL wichtigsten zur Spaltung beitragenden Nuklide für einen IMF-Brennstoff mit einem Anfangsgehalt von 0,64 g/cm³ RPu. Angegeben ist jeweils die Konzentration des Nuklids, der effektive Wirkungsquerschnitt, der sich damit ergebende makroskopische Wirkungsquerschnitt sowie der prozentuale Anteil des Nuklids an der Gesamtzahl der Spaltungen.

ergeben. Insgesamt lassen sich damit die im Rahmen dieser Arbeit behandelten Spaltprodukte zu linearen Reaktionsketten zusammenfassen. Diese können dann entkoppelt gelöst werden, indem beginnend bei den Nukliden mit niedrigster Massenzahl jeweils mit der Routine `DSolve[DGL, Pi, t]` in *Mathematica* eine analytische Lösung der sich ergebenden inhomogenen Differenzialgleichung erster Ordnung (siehe Gl. 4.10) bestimmt wird. Für DGL werden dabei die jeweils bestimmende Differentialgleichung sowie die Anfangsbedingung in Form der Nuklidkonzentration bei Beginn eines Zeitschritts angegeben. Die dabei gewonnene analytische Lösung kann dann wiederum als Inhomogenität in die bestimmende Differenzialgleichung des jeweils nächsten Nuklids in der Kette eingesetzt werden. Die sich damit jeweils ergebenden inhomogenen Differenzialgleichungen erster Ordnung werden

in *Mathematica* sukzessive gelöst.

Alle Spaltprodukte mit relevanten Wirkungsquerschnitten werden anschließend bei der erneuten Berechnung effektiver Wirkungsquerschnitte in MCNP explizit berücksichtigt (siehe Anhang F, Tabelle F.2). Neben den berücksichtigten Spaltprodukten werden für die untersuchten uranfreien Brennstoffe auch die zugrundegelegte Brennstoffmatrix sowie ggf. verwendete brennbare Neutronengifte bei der Gruppe der Spaltprodukte mit erfasst. Die einzige sich dabei ergebende Änderung hinsichtlich der Lösung der Abbrandgleichungen besteht darin, dass die entsprechenden Konzentrationen der relevanten Nuklide beim ersten Zeitschritt, d. h. für den frischen Brennstoff, bereits von Null verschieden sind.

4.3.3 Verwendete Abbrandintervalle und zweiter Iterationsschritt

Bei der iterativen Lösung der Abbrandgleichungen ergibt sich grundsätzlich ein systematischer Fehler dadurch, dass die in den Berechnungen verwendeten effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP auf der Basis der Nuklidzusammensetzung zu Beginn eines Abbrandschritts bestimmt werden. Da sich typischerweise im Laufe des Abbrands einerseits mit dem Abbau der spaltbaren Isotope ein stärker thermisches Neutronenspektrum ergibt, es andererseits beim Aufbau von Resonanzabsorbern zu einer verstärkten Resonanzselbstabschirmung kommt, ändern sich auch die effektiven Wirkungsquerschnitte der betrachteten Nuklide sehr stark. Im Rahmen dieser Arbeit werden daher geeignete Abbrandintervalle so gewählt, dass die mittlere Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte während eines Abbrandintervalls gering ist, während gleichzeitig ein akzeptabler Rechenzeitaufwand gewährleistet bleibt. Da die für die Durchführung von Abbrandrechnungen notwendige Rechenzeit wesentlich durch die Bestimmung der effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP bestimmt wird, legt die Anzahl der gewählten Abbrandintervalle zugleich den benötigten Rechenzeitaufwand fest.

Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Brennstoff-Typen werden zwei verschiedene Abbrandintervalle bei den Berechnungen in MCMATH zugrundegelegt. Alle Brennstoffe sollen einheitlich, sofern der anfängliche Spaltstoffgehalt dies zulässt, bis zu einem Maximalabbrand von 450 kWd/cm^3 entsprechend 50 MWd/kg(HM) untersucht werden. Brennstoffe auf der Basis von Uran (Uran- bzw. MOX-Brennstoffe) werden bei einer typischen mittleren Leistungsdichte von $38,3 \text{ W/g(HM)}$ untersucht (OECD/NEA, 1995a). Bei einer zugrundegelegten Brennstoffdichte von einheitlich 9 g(HM)/cm^3 entspricht dies einer Leistungsdichte von $344,7 \text{ W/cm}^3$ und damit einer Bestrahlungszeit von $1305,48 \text{ FPD}$ zum Erreichen von 450 kWd/cm^3 . Dieser Zielabbrand wird in einheitliche Schritte von 45 kWd/cm^3 unterteilt. Weiterhin wird ein Abbrandschritt bei 5 FPD zu Beginn des Abbrands eingeführt, um die mit dem schnellen Aufbau von Xe-135 verbundene Änderung des Neutronenspektrums angemessen zu erfassen.

Für die Brennstoffe auf der Basis einer uranfreien Matrix wird eine einheitliche Leistungsdichte von 360 W/cm^3 vorgegeben. Damit sind zum Erreichen des gewählten Zielabbrands 1250 FPD notwendig. Da die uranfreien Brennstoffe am Ende der Bestrahlung einen stär-

keren Abfall der Reaktivität aufweisen (siehe Kapitel 7), wird für diese Brennstoffe am Ende des Zielabbrands ein zusätzlicher kürzerer Abbrandschritt vorgesehen. Daher werden bei den uranfreien Brennstoffen bis 1200 FPD Abbrandschritte für jeweils 120 FPD (entsprechend 43,2 kWd/cm³) und ein weiterer Abbrandschritt bis 1250 FPD durchgeführt.¹⁷ Auch bei den uranfreien Brennstoffen wird ein zusätzlicher erster Abbrandschritt bei 5 FPD vorgenommen.

Zur weiteren Reduzierung des mit einem iterativen Ansatz zur Lösung der Abbrandgleichungen verbundenen systematischen Fehlers können prinzipiell verschiedene Verfahren angewendet werden (siehe hierzu Kapitel 4.5.5). Im Rahmen von MCMATH wird hierzu ein zweiter Iterationsschritt zur Bestimmung der abbrandabhängigen Nuklidzusammensetzung durchgeführt, nachdem in einem ersten Schritt wie bisher beschrieben die effektiven Wirkungsquerschnitte und abbrandabhängigen Nuklidkonzentrationen für den gesamten Abbrandzeitraum (d. h. bis zum Zielabbrand von 450 kWd/cm³) bestimmt wurden. Bei diesem zweiten Iterationsschritt wird auf die Berechnung von effektiven Wirkungsquerschnitten mit MCNP verzichtet. Dafür wird auf der Basis der im ersten Iterationsschritt bestimmten effektiven Wirkungsquerschnitte in *Mathematica* der abbrandabhängige Verlauf der effektiven Wirkungsquerschnitte interpoliert. Für die Berechnung der abbrandabhängigen Nuklidkonzentrationen werden in diesem zweiten Iterationsschritt dann Werte der effektiven Wirkungsquerschnitte im Intervall k zum Zeitpunkt $(t_k + t_{k+1})/2$ bestimmt. Zusätzlich kann bei diesem zweiten Iterationsschritt die Zahl der gewählten Abbrandschritte erhöht werden, so dass bspw. für die uranfreien Brennstoffe ein Abbrandintervall nur noch 60 FPD (entsprechend 21,6 kWd/cm³) umfasst. Insgesamt lassen sich damit zufriedenstellende Genauigkeiten in der Berechnung der abbrandabhängigen Nuklidkonzentrationen erreichen (für eine quantitative Diskussion siehe Kapitel 4.5.5).

4.4 Bestimmung von Reaktivitätskoeffizienten im Rahmen von MCMATH

Die Reaktivität ρ eines Brennstoffs ist außer vom Abbrand auch von weiteren Parametern x_i wie den Temperaturen von Moderator und Brennstoff und den damit verbundenen Dichten etc. abhängig. Für die Untersuchung des Verhaltens von Brennstoffen bei Änderungen dieser Parameter sind sogenannte Reaktivitätskoeffizienten definiert. Diese geben die Änderung der Reaktivität in Abhängigkeit von der Änderung bestimmter Zustandsgrößen x des betrachteten Systems beim Übergang vom Zustand x_1 zu x_2 wieder

$$\alpha(x_2, x_1) := \frac{\rho(x_2) - \rho(x_1)}{x_2 - x_1} = \frac{\Delta\rho}{\Delta x}.$$

¹⁷Der Beginn des starken Abfalls der Reaktivität ist bei den uranfreien Brennstoffen abhängig von der anfänglichen Plutoniumkonzentration. Daher wäre prinzipiell bei diesen Brennstoffen eine variable Schrittweite der Abbrandrechnungen in Abhängigkeit vom zu erwartenden Reaktivitätsverlust vorteilhaft. Eine solche Option ist allerdings in der gegenwärtigen Fassung von MCMATH noch nicht implementiert. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher auf eine individuelle Anpassung der Abbrandintervalle bei den uranfreien Brennstoffen auf Grund des damit verbundenen hohen administrativen Aufwands verzichtet.

Durch die Reaktion eines Systems auf die Änderung seiner Zustandsgrößen wird insbesondere auch die zeitliche Entwicklung des Systems nach einer Störung bestimmt (Verhalten bei Transienten). Die Reaktivitätskoeffizienten sind zur Beurteilung der Reaktorsicherheit wesentlich, da sie bei geeigneter Auslegung des Reaktors bei Abweichungen vom Gleichgewichtszustand zu einer negativen Rückkopplung führen und damit den Gleichgewichtszustand des Systems stabilisieren. Generell werden im Rahmen dieser Arbeit die Reaktivitätskoeffizienten auf der Basis von Zellrechnungen bestimmt, d. h. Einflüsse der konkreten Kernausslegung wie die Kerngröße oder Leckageverluste werden nicht berücksichtigt. Im Folgenden sollen kurz die relevanten Reaktivitätskoeffizienten und ihre Bestimmung im Rahmen von MCMATH dargestellt werden.

4.4.1 Bor-Wirksamkeit (BWC)

Ein erster wesentlicher Reaktivitätskoeffizient ist durch die Abhängigkeit der Reaktivität ρ von der Konzentration des Bor im Kühlmittel c_{Bor} , d. h. der Bor-Wirksamkeit (boron worth coefficient, BWC)¹⁸ gegeben:

$$BWC := \alpha_{c_{\text{Bor}}} = \frac{\Delta \rho}{\Delta c_{\text{Bor}}}.$$

Typische Werte des BWC liegen bei einigen pcm/ppm(Bor). Als wesentlicher Neutronenabsorber wirkt dabei das Bor-Isotop ^{10}B durch eine (n, α)-Reaktion. Aufgrund des reinen $1/v$ -Verlaufs des Einfangsquerschnitts in ^{10}B ist der effektive Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion stark vom Anteil des thermischen Neutronenflusses am Energiespektrum der Neutronen abhängig. Die Härte des Neutronenspektrums ist dabei wesentlich vom Moderator zu Brennstoff-Verhältnis (i. A. angegeben als Wasserstoff zu Schwermetallverhältnis, H/HM) abhängig. Da im Rahmen dieser Arbeit ein einheitliches Brennstoffgitter und gleiche Moderatorordichte für alle Brennstoffe angenommen wird, ist das H/HM-Verhältnis wesentlich durch die Anfangsanreicherung des Brennstoffs bzw. durch den anfänglichen Plutoniumgehalt sowie ggf. verwendete brennbare Neutronengifte bestimmt. Je höher der anfängliche Gehalt spaltbarer Materialien, desto höher ist also einerseits aufgrund der höheren mittleren Reaktivität der Bor-Bedarf bei Anfang eines Zyklus (beginning of cycle, BOC), gleichzeitig ist der BWC aufgrund des härteren Neutronenspektrums reduziert, was zu einem nochmals erhöhten Bor-Bedarf führt. Zudem trägt Bor selbst aufgrund seiner Eigenschaft als thermischer Neutronenabsorber zu einer Härtung des Spektrums bei. Auch die Bor-Konzentration kann daher ein für die Bor-Wirksamkeit bestimmender Faktor sein.

Für die Bestimmung des BWC wurden im Rahmen dieser Arbeit abbrandabhängige Reaktivitätsrechnungen mit MCNP für Bor-Konzentrationen c_{Bor} von 0 ppm und 2000 ppm

¹⁸Abkürzungen für wichtige Begriffe werden im Rahmen dieser Arbeit häufig aus dem englischen Sprachgebrauch übernommen, dabei kann bspw. (Deutscher Normenausschuß, (Hrsg.), 1973) zur Übertragung herangezogen werden.

Bor im Moderator vorgenommen.¹⁹ Der BWC in Abhängigkeit vom Abbrand B ergibt sich zu

$$\alpha_{c_{\text{Bor}}}(B) = \frac{\Delta\rho(c_{\text{Bor}}, B)}{\Delta c_{\text{Bor}}} = \frac{\rho(c_{\text{Bor},2}, B) - \rho(c_{\text{Bor},1}, B)}{c_{\text{Bor},2} - c_{\text{Bor},1}}. \quad (4.12)$$

Dabei werden im Rahmen dieser Arbeit Werte des BWC jeweils bei den zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte mit MCNP im Verlauf der Abbrandrechnungen zugrundegelegten Zeitpunkten bestimmt (siehe Kapitel 4.3.3).

4.4.2 Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)

Der Brennstoff-Temperaturkoeffizient (fuel temperature coefficient, FTC) ist definiert durch die Änderung der Reaktivität bei einer Änderung der Brennstofftemperatur T_F :

$$FTC := \alpha_{T_F} = \frac{\Delta\rho}{\Delta T_F}.$$

Dabei können prinzipiell mehrere Effekte eine Rolle spielen. So führt ein Temperaturanstieg im Brennstoff zu einer Dichteänderung des Brennstoffs. Aufgrund der typischerweise sehr geringen Ausdehnungskoeffizienten (für Uran-Brennstoff bspw. $\approx 10^{-5}/\text{K}$) ist die Auswirkung dieses Effekts auf die Reaktivität jedoch sehr gering und kann üblicherweise vernachlässigt werden.

Ein wesentlicher Beitrag wird demgegenüber durch die Änderung der effektiven Wirkungsquerschnitte aufgrund der Dopplerverbreiterung der Resonanzen in den energieabhängigen Wirkungsquerschnitten verursacht. Daher wird der FTC auch häufig als Dopplerkoeffizient bezeichnet. Hierzu tragen insbesondere der Einfangsquerschnitt im U-238, aber auch die Querschnitte von Pu-239, Pu-240 und ggf. Pu-242, sowie diejenigen von eventuell vorhandenen Neutronenabsorbern mit ausgeprägten Resonanzen in den Wirkungsquerschnitten wie z. B. Erbium bei.

Der Absolutwert des FTC ist typischerweise gering und liegt in der Größenordnung pcm/K, dennoch trägt der FTC stark zur Stabilisierung bei Transienten bei, da sich die Brennstofftemperatur im Gegensatz zur Moderatortemperatur sehr schnell bei Änderung der Leistungsfreisetzung anpasst, so dass der FTC zu einer schnellen Rückkopplung bei Leistungsveränderungen führt.

Für die Bestimmung des FTC mittels MCNP müssen Reaktivitätsrechnungen mit energieabhängigen Wirkungsquerschnitten bei verschiedenen Brennstofftemperaturen durchgeführt werden. Hierfür stehen erst seit wenigen Jahren verschiedene Bibliotheken öffentlich zur Verfügung (siehe Anhang F). Im Rahmen dieser Arbeit wird der FTC bestimmt, indem für eine gegebene Brennstoffzusammensetzung die Reaktivität bei Brennstofftemperaturen von 300 K und 900 K berechnet wird. Dabei werden die Bibliotheken des Korean Atomic Energy Research Institutes (Gil, 2001) verwendet, die für alle relevanten, im

¹⁹Dabei stellt eine Konzentration von 2000 ppm Bor bereits eine sehr hohe Bor-Konzentration für heutige DWR dar. So wird zur Sicherstellung der langfristigen Unterkritikalität in einem abgeschalteten DWR in Deutschland heute mit 2200 ppm boriiertes Wasser verwendet.

Rahmen von MCMATH in MCNP verwendeten Nuklide Wirkungsquerschnitte bei diesen Temperaturen bereitstellen. Zusätzlich zur Wahl einer Wirkungsquerschnitts-Bibliothek muss die Temperatur der Brennstoffzelle in MCNP durch die Angabe der mittleren Temperatur angepasst werden (siehe Tabelle 4.4).²⁰

	TMP-Einträge in MCNP		
T_F	Brennstoff	Hüllrohr	Moderator
900 K	7,7553e-8	5,1702e-8	5,1702e-8
600 K	5,1702e-8	5,1702e-8	5,1702e-8
300 K	2,5851e-8	5,1702e-8	5,1702e-8

Tabelle 4.4: Angaben der Brennstoff-, Hüllrohr- und Moderatortemperatur in [MeV] (entsprechend $8,617 \times 10^{-11}$ T mit T in [K]) in der MCNP-Steuerungsdatei.

Der FTC in Abhängigkeit vom Abbrand B ergibt sich dann durch

$$\alpha_{T_F}(B) = \frac{\Delta\rho(T_F, B)}{\Delta T_F} = \frac{\rho(T_{F,2}, B) - \rho(T_{F,1}, B)}{T_{F,2} - T_{F,1}}. \quad (4.13)$$

Auch der FTC kann durch das Moderationsverhältniss beeinflusst werden. Bei einer starken Untermoderation, wie sie für Plutoniumbrennstoffe oder im Falle eines teilweisen Moderationsverlusts vorliegen kann, besteht eine geringere Resonanzentkommwahrscheinlichkeit, da die Neutronen häufiger in Bereiche mit Brennstoff eindringen. Damit nimmt die Bedeutung der Resonanzen zu und der Betrag des FTC kann steigen.

Weiterhin ist der Betrag des FTC von der Ausgangstemperatur des Brennstoffs abhängig. Eine höhere Temperatur des Brennstoffs bedeutet eine stärkere Dopplerverbreiterung der Resonanzen, die zu einer geringeren Resonanzselbstabschirmung führt. Damit ist bei höheren Brennstofftemperaturen der Betrag des FTC geringer als bei niedrigen (siehe hierzu auch Kapitel 5.3.5).

4.4.3 Moderator-Temperaturkoeffizient (MTC)

Als weiterer wesentlicher Reaktivitätskoeffizient ist der Moderator-Temperaturkoeffizient (moderator temperature coefficient, MTC) zu berücksichtigen. Dieser gibt die Änderung der Reaktivität aufgrund einer Veränderung der Moderatortemperatur T_M wieder:

$$MTC := \alpha_{T_M} = \frac{\Delta\rho}{\Delta T_M}.$$

Ein Einfluss der Moderatortemperatur auf die Reaktivität wird durch zwei wesentliche Effekte hervorgerufen. Einmal ändert sich bei einer Temperaturänderung die mittlere

²⁰Von MCNP können Wirkungsquerschnitte ggf. an andere Temperaturen angepasst werden. Hierzu wird in der MCNP-Eingabedatei mittels einer sog. TMP-Zeile die Temperatur der verschiedenen Zellen festgelegt. Dies muss im Rahmen der korrekten Behandlung der Temperaturabhängigkeit in MCNP berücksichtigt werden.

Energie E_M der Moderatormoleküle und damit verändert sich auch die mittlere Energie der thermischen Neutronen, wenn diese sich im thermischen Gleichgewicht mit dem Moderator befinden (Spektral-Anteil).

Ein weiterer Effekt ist auf die Änderung der Moderatordichte ρ_M aufgrund der thermischen Ausdehnung des Moderators zurückzuführen. Eine Änderung der Moderatordichte verändert das Moderator zu Brennstoff-Verhältnis und führt damit zu einer geänderten Energieverteilung der Neutronen, d. h. eine geringere Moderation führt zu einem härteren Spektrum (Dichte-Anteil).

Der MTC kann daher in zwei wesentliche Anteile zerlegt werden:

$$\frac{\Delta\rho}{\Delta T_M} = \left. \frac{\Delta\rho}{\Delta E_M} \right|_{\rho_M = \text{const}} + \left. \frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_M} \right|_{E_M = \text{const}}.$$

Zur Abschätzung der Relevanz der verschiedenen Effekte auf den MTC können die beiden Effekte getrennt in einer MCNP-Rechnung berücksichtigt werden. Dies soll am Beispiel einer Berechnung der Reaktivität für einen Uran-Brennstoff mit 4,2% Anfangsanreicherung demonstriert werden. Hierfür wird zunächst die Reaktivität für eine Moderatordichte von 0,714 g/cm³ mit einer Bor-Konzentration von 500 ppm unter Verwendung von MCNP-Bibliotheken bei einer Moderator-Temperatur von 600 K bestimmt (siehe Tab. 4.5, ungestörter Fall).²¹ Der Spektral-Anteil des MTC kann bestimmt werden, indem lediglich die in MCNP verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken sowie die Temperatur der Zelle in MCNP von 600 K auf 300 K verändert werden. Für den Dichte-Anteil des MTC kann demgegenüber untersucht werden, wie sich die Reaktivität bei gleicher vorgegebener Temperatur ändert, wenn die Dichte des Moderators auf 1,0 g/cm³ angehoben wird.

	Temperatur der Wirkungsquerschnitts- Bibliothek [K]	Moderator- Dichte [g/cm ³]	k _∞	$\Delta\rho/\Delta T_M$ [pcm/K]
Ungestört	600 K	0,714	1,2997	
Spektral-Anteil	300 K	0,714	1,3022	−0,48
Dichte-Anteil	600 K	1,0	1,3206	−4,68

Tabelle 4.5: Einfluss der Änderung der kinetischen Energie des Moderators (Spektral-Anteil) und der Moderatordichte (Dichte-Anteil) auf die Reaktivität.

Wie aus Tab. 4.5 ersichtlich ist, liegt der Spektral-Anteil bei einem üblichen Uran-Brennstoff in der Größenordnung von 10% des MTC, auch bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten plutoniumhaltigen Brennstoffen ergeben sich vergleichbare Werte. Werden lediglich die Auswirkungen der Moderatortemperatur auf die Moderatordichte erfasst, ist der MTC in seiner Berechnung im Rahmen von MCNP gleichwertig

²¹Der Wert von 0,714 g/cm³ entspricht einer Moderatortemperatur von 580 K bei 150 bar Druck (Verein Deutscher Ingenieure, 1994).

zum Moderatorordichte- oder auch Dampfblasen-Koeffizienten (Moderator Void Coefficient, MVC).²²

4.4.4 Moderatorordichte-Koeffizient (MVC)

Speziell in Siedewasserreaktoren wird das Kühlmittel beim Durchlaufen des Kerns aufgeheizt und verdampft. Der entstehende Dampf trägt zu einer Reduktion des dem Moderator zur Verfügung stehenden Volumens bei, welche durch den sogenannten Dampfblasen-Anteil angegeben wird (Moderator Void Coefficient, MVC).²³ Da eine Änderung des Volumenanteils bei konstanter Dichte des Moderators einer Änderung der Dichte bei festem Moderatorvolumen äquivalent ist, kann der MVC bei den Berechnungen in MCNP durch eine entsprechende Änderung der Moderatorordichte ρ_M bestimmt werden:

$$MVC := \alpha_{\rho_M} = \frac{\Delta \rho}{\Delta \rho_M}.$$

Da diese Vorgehensweise der im Rahmen des MTC beschriebenen Änderung der Moderatorordichte entspricht, unterscheiden sich formal der MTC und der MVC durch den Spektral-Anteil des MTC, welcher beim MVC aufgrund der angenommenen gleichen Moderatortemperatur nicht auftritt. Da dieser jedoch wie oben abgeschätzt im Verhältnis zum Dichte-Anteil des MTC klein ist, wird im Rahmen dieser Arbeit für alle untersuchten Brennstoffe der MVC als wesentlicher Reaktivitätskoeffizient bestimmt.

Im Rahmen dieser Arbeit werden Änderungen der Moderatorordichte von 100% auf 90% (10% Void) bzw. von 100% auf 10% (90% Void) untersucht. Bei der Bestimmung des MVC für die verschiedenen Brennstoff-Typen ist auch der jeweilige Borgehalt im Moderator mit zu berücksichtigen. Da sich zugleich mit einer Änderung der Moderatorordichte auch der Borgehalt verändert, ist mit steigender Bor-Konzentration ein positiver Beitrag zum MVC verbunden. Daher kann auch bei einem gegebenen Brennstoff eine obere Schranke für die akzeptable Bor-Konzentration existieren, ab der der MVC positive Werte annehmen würde. Durch eine solche maximal zulässige Bor-Konzentration wäre zugleich auch die maximal durch Bor im Kühlmittel noch kompensierbare Überschussreaktivität bei Beginn eines Abbrandzykluses festgelegt (siehe Kapitel 8). Dieser Effekt wird jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht systematisch untersucht.

Insbesondere bei der Berechnung des MVC für 90% Void stellen die hier durchgeführten Rechnungen auf der Basis eines unendlich ausgedehnten Zellgitters eine relativ grobe Annäherung an reale Verhältnisse dar. Bei der sehr geringen verbleibenden Moderation und den damit verbundenen sehr großen mittleren freien Weglängen ist ein relevanter Anteil hinsichtlich der Änderung der Reaktivität mit einer Zunahme der Neutronenleckage aus dem Kern verbunden, was auf der Basis von Zellrechnungen nicht erfasst werden kann. Da eine höhere Leckage zu einem stärker negativen Wert des MVC führt, können

²²Für ein allgemeineres Verfahren zur Bestimmung des MTC aus den zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitten siehe bspw. Mourtzanos et al. (2001).

²³Da die Dichte des Wassers in Dampfblasen im Verhältnis zur Flüssigkeit sehr gering ist, wird der Anteil der Dampfblasen als Vakuum (Void) interpretiert.

die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte des MVC jedoch als eine konservative Abschätzung hinsichtlich der im realen System zu erwartenden Werte betrachtet werden. Auch an dieser Stelle gilt, dass für eine genauere Untersuchung der Eigenschaften von uranfreien Brennstoffen in Hinblick auf ihr neutronenphysikalisches Verhalten unter Störfallbedingungen reaktordynamische Rechnungen durchgeführt werden müssten, die über den Rahmen dieser Arbeit hinausgehen.

4.4.5 Statistische Genauigkeit von MCNP-Berechnungen und Reaktivitätskoeffizienten

Ein wesentlicher Vorteil von Monte-Carlo Rechnungen gegenüber analytischen Verfahren ist dadurch gegeben, dass keine systematischen Vereinfachungen bei der Übertragung des physikalischen Problems in die Computersimulation vorgenommen werden. Prinzipiell zumindest „wiederholt“ die Computersimulation lediglich die realen Vorgänge. Dabei werden die zu bestimmenden physikalischen Größen durch die Mittelung über eine große Anzahl von Einzelprozessen errechnet. Bei den in der Simulation ermittelten Werten handelt es sich daher um statistische Werte, ihre Genauigkeit ist daher auch von der Güte der Statistik, d. h. im wesentlichen von der berücksichtigten Teilchenzahl abhängig.

Die folgenden Ausführungen gehen lediglich auf die statistischen Ungenauigkeiten ein, d. h. lediglich auf Abweichungen der zufällig ermittelten Einzelwerte von dem für diese Simulation zu erwartenden Mittelwert (Briesmeister, 2000, Kap. 2.VI.). Natürlich gibt es darüber hinaus systematische Ungenauigkeiten, die zu einer Abweichung des für diese Simulation zu erwartenden Mittelwerts von dem in der realen physikalischen Situation zu erwartenden Meßwert führen können. Systematische Fehler können bspw. durch mangelhafte Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken, ungenaue Geometrien oder falsche Materialzusammensetzungen bei der Übertragung von der realen Situation in die Monte-Carlo Simulation verursacht werden. Solche systematischen Fehler können natürlich durch höhere statistische Genauigkeiten nicht erkannt oder gar ausgeglichen werden. Um eine Aussage über die Genauigkeit der Simulation im Vergleich zur physikalischen Realität zu gewinnen, müssen daher Benchmarks zum Vergleich von Monte-Carlo Berechnungen und experimentellen Ergebnissen durchgeführt werden (siehe hierzu auch Kapitel 5).

Für eine Zufallsgröße x mit einer Wahrscheinlichkeitsverteilung $f(x)$ bestimmt sich der Erwartungswert $E(x)$ zu

$$E(x) = \int x f(x) dx.$$

Da die Wahrscheinlichkeitsverteilung der interessierenden Größen natürlich nicht a priori vorliegt, kann sie nur aus den durch das Monte-Carlo Verfahren ermittelten N Werten x_i (Stichproben) bestimmt werden. Der Erwartungswert $E(x)$ wird daher durch den empirischen Mittelwert der Stichproben x_i

$$E(x) \approx \bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i$$

bestimmt. Nach dem starken Gesetz der Großen Zahl geht für großes N der Wert von \bar{x} gegen den Wert von $E(x)$, sofern $E(x)$ endlich ist.

Für die Varianz der Verteilung gilt

$$\sigma^2 = \int (x - E(x))^2 f(x) dx = E(x^2) - (E(x))^2.$$

Ebenso wie der Erwartungswert $E(x)$ ist die Varianz der Zufallsgröße typischerweise nicht bekannt, auch sie kann jedoch durch die empirische Varianz S für großes N aus den Monte-Carlo Werten nach

$$S^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N - 1} \approx \bar{x^2} - \bar{x}^2$$

angenähert werden, wobei

$$\bar{x^2} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i^2$$

gilt. Allerdings interessiert physikalisch nicht die empirische Varianz der Stichproben um den Mittelwert, sondern die Varianz des berechneten Mittelwertes $S_{\bar{x}}$ um den eigentlichen physikalischen Erwartungswert $E(x)$. Die geschätzte Varianz des Mittelwerts $S_{\bar{x}}^2$ ist durch

$$S_{\bar{x}}^2 = \frac{S^2}{N}$$

gegeben.

Damit ist zugleich der wesentliche Nachteil der Monte-Carlo Methode beschrieben, nämlich die Tatsache, dass die geschätzte Standardabweichung $S_{\bar{x}}$ lediglich proportional zu $1/\sqrt{N}$ abnimmt, d. h. um eine Halbierung der Standardabweichung zu erreichen, muss die Zahl der berücksichtigten Zufallsgrößen vervierfacht werden. Dies kann zu extrem zeitaufwendigen Berechnungen führen.

Um für die mit dem Monte-Carlo Verfahren bestimmten Werte Konfidenzintervalle angeben zu können, kann der zentrale Grenzwertsatz der Statistik herangezogen werden (Bronstein und Semendjajew, 1989). Dieser sagt aus, dass für große N und unabhängige Zufallsgrößen x_i , welche die selbe Verteilungsfunktion $f(x)$ aufweisen, die Verteilung von \bar{x} durch eine Normalverteilung gegeben ist, wenn die Verteilung einen endlichen Mittelwert und eine endliche Varianz besitzt.²⁴ Dann gelten Konfidenzintervalle für den tatsächlichen Erwartungswert $E(x)$ nach

$$\bar{x} - S_{\bar{x}} < E(x) < \bar{x} + S_{\bar{x}} \quad (68\% \text{ Konfidenzintervall})$$

und

$$\bar{x} - 2S_{\bar{x}} < E(x) < \bar{x} + 2S_{\bar{x}} \quad (95\% \text{ Konfidenzintervall}).$$

²⁴Für normalverteilte Zufallsgrößen (Gaußverteilung) gilt:

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp \left[-\frac{1}{2} \frac{(x-a)^2}{\sigma^2} \right].$$

MCNP gibt für alle Tallys neben den Mittelwerten \bar{x} als Maß für die Genauigkeit der berechneten Werte den relativen Fehler R an, wobei R durch die geschätzte Standardabweichung im Verhältnis zum Mittelwert

$$R = \frac{S_{\bar{x}}}{\bar{x}}$$

gegeben ist. Als Richtwert wird hierbei angenommen, dass ab einem Wert von R kleiner als 0,1 das Ergebniss der Berechnung als statistisch zuverlässig angesehen werden kann.²⁵

Bei der Berechnung von Reaktivitätskoeffizienten sind aufgrund der geringen Absolutwerte der Koeffizienten (bspw. in der Größenordnung von $10^{-5}/\text{K}$ für den FTC) bei einer angenommenen Änderung der Zustandsgröße x (bspw. in der Größenordnung von 10^2 K) typische Reaktivitätsunterschiede in der Größenordnung von 10^{-2} – 10^{-3} zu erwarten. Bei der Berechnung mit MCNP wird jedoch wie gerade dargestellt der Multiplikationsfaktor k_{∞} für die verschiedenen Zustände nur mit einer statistischen Genauigkeit Δk_{∞} bestimmt.

Für die Reaktivität ρ_{∞} gilt

$$\rho_{\infty} = \frac{k_{\infty} - 1}{k_{\infty}}$$

und für die statistische Genauigkeit von ρ_{∞} ergibt sich damit:

$$\Delta\rho_{\infty} = \left(\frac{1}{k_{\infty}} - \frac{k_{\infty} - 1}{k_{\infty}^2} \right) \Delta k_{\infty} = \frac{1}{k_{\infty}^2} \Delta k_{\infty}.$$

Für den statistischen Fehler der Reaktivitätskoeffizienten

$$\alpha(x_2, x_1) = \frac{\rho_{\infty}(x_2) - \rho_{\infty}(x_1)}{x_2 - x_1}$$

beim Übergang von x_1 zu x_2 gilt damit

$$\Delta\alpha(x_2, x_1) = \frac{\Delta\rho_{\infty}(x_1) + \Delta\rho_{\infty}(x_2)}{x_2 - x_1}.$$

Um eine akzeptable Genauigkeit in der Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten zu erreichen, sind daher sehr genaue MCNP-Rechnungen durchzuführen. Diese sind entsprechend rechenzeitaufwendig.²⁶ Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher für die Berechnung der Reaktivitätskoeffizienten eine relative Standardabweichung der MCNP-Rechnung für k_{∞} von weniger als 5×10^{-4} vorgegeben. Damit ergibt sich ein 95%-Konfidenz-Intervall für k_{∞} durch eine 2σ -Umgebung mit einer Genauigkeit von 10^{-3} .²⁷ Die auf dieser Basis berechneten Reaktivitätskoeffizienten weisen dann typischerweise statistische Fehler von

²⁵Für spezielle Tallys, insbesondere Detektortallys sollte jedoch sogar ein R kleiner 0,05 erreicht werden, um eine hinreichende Genauigkeit zu gewährleisten.

²⁶Die Standardabweichung des Multiplikationsfaktors nimmt mit \sqrt{N} , also der Wurzel aus der Anzahl der gestarteten Neutronen, ab.

²⁷Da k_{∞} von der Größenordnung eins ist entspricht dies dann auch in etwa dem relativen Fehler von ρ_{∞} .

weniger als 10% auf. Zum Erreichen dieser Genauigkeit wurden für die Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten in MCNP 50 passive und 500 aktive Zyklen mit jeweils 6000 Neutronen gerechnet.²⁸

4.5 Vergleich zwischen MCMATH und MCODE

Mit zunehmender Rechnerleistung ist die Durchführung von Abbrandrechnungen auf der Basis von effektiven Wirkungsquerschnitten, welche mit Monte-Carlo Verfahren bestimmt werden, zunehmend einfacher möglich. In der Folge wurden seit Mitte der 1990er Jahre weltweit verschiedene Programmsysteme entwickelt, welche auf dem in dieser Arbeit verwendeten Ansatz einer Kopplung eines Monte-Carlo Neutronentransportprogramms einerseits und eines Abbrandmoduls andererseits beruhen. Als wesentliche Programmsysteme können hier *MOCUP* (Moore et al., 1995), *Monteburns* (Poston und Trellue, 1999), *MCB* (Cetnar et al., O.D.) und *MCODE* (Xu, 2003) genannt werden.

Für die Bestimmung von effektiven Wirkungsquerschnitten mit MCNP liegen umfangreiche eigenständige Benchmarks vor, so dass dieser Schritt im Rahmen dieser Arbeit nicht explizit validiert werden soll. Neu ist im Rahmen von MCMATH dagegen die Auswertung der mit MCNP gewonnenen Daten und ihre Verwendung im Rahmen der Abbrandrechnungen mittels *Mathematica*. Für einen Vergleich mit MCMATH bieten sich daher insbesondere solche Systeme an, die zur Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte MCNP verwenden.

An der TU-Darmstadt stand dafür eine Version des U.S.-amerikanischen Programmsystems MCODE zur Verfügung (Xu, 2003). Beim MCNP-ORIGEN DEpletion program (MCODE) handelt es sich um eine Kopplung der beiden Programme MCNP und ORIGEN2 zur Durchführung von Abbrandrechnungen für beliebige dreidimensionale Geometrien. Das Programm wurde am Massachusetts Institute of Technology (MIT) entwickelt und basiert auf den Versionen MCNP-4C und ORIGEN-2.2. Da wesentliche Unterschiede zwischen MCODE und MCMATH hinsichtlich der verwendeten Abbrandroutine bestehen, soll zunächst knapp das Abbrandprogramm ORIGEN2 vorgestellt werden.

4.5.1 Das Abbrandprogramm ORIGEN2

Bei ORIGEN2 handelt es sich um ein Ein-Gruppen Zellabbrandprogramm, dass am Oak Ridge National Laboratory (ORNL) entwickelt wurde (Croff, 1980). Es ist in der Lage, basierend auf enthaltenen Bibliotheken effektiver Wirkungsquerschnitte für eine Bandbreite verschiedener Standardreaktoren bzw. -brennstoffe die Änderung der Nuklidzusammensetzungen im Laufe des Abbrands zu bestimmen. Dabei umfasst es ca. 1700 Isotope, davon 130 Aktinide, 850 Spaltprodukte sowie weitere 720 Aktivierungsprodukte. Es können

²⁸Die sog. passiven Zyklen werden zur Bestimmung einer Neutronenquellverteilung für die gegebene Brennstoffzelle durchgeführt. Erst während der sog. aktiven Zyklen werden die sich ergebenden Werte der Kritikalität von MCNP für die Bestimmung eines statistischen Wertes von k_{∞} verwendet.

wichtige Parameter wie die Nuklidzusammensetzung, Leistungsfreisetzung, Radioaktivität oder -toxizität des Brennstoffs bestimmt werden.

Die in ORIGEN2 implementierte Lösung der Abbrandgleichungen 4.1 ist mit derjenigen von MCMATH vergleichbar. Relevante Unterschiede bestehen hinsichtlich der zugrundeliegenden Datenbasis, der unterschiedlichen Behandlung von kurzlebigen Nukliden in ORIGEN2 gegenüber MCMATH sowie der Bestimmung des effektiven Neutronenflusses innerhalb eines Abbrandschritts.

So verfügt ORIGEN2 zunächst nicht über die Möglichkeit, unabhängig abbrandabhängige Wirkungsquerschnitte zu bestimmen. Vielmehr wurden diese für die wesentlichen Reaktor- und Brennstoff-Typen mit weiteren Programmsystemen bestimmt und stehen in ORIGEN2 als Datensätze zur Verwendung bereit, so dass ORIGEN2 zunächst in seiner Anwendbarkeit auf die mit den vorliegenden Bibliotheken erfassten Reaktorsysteme bzw. Brennstoff-Typen beschränkt ist.

Die in die Abbrandgleichung eingehende Übergangsmatrix (siehe Gl. 4.1 bzw. 4.8) umfasst im Falle von ORIGEN2 1700×1700 Übergangswahrscheinlichkeiten. Da ein Nuklid jedoch typischerweise nur ca. 10 Ausgangsnuklide aufweist, sind von den 1700×1700 nur etwa 1700×10 Werte von Null verschieden. Zur weiteren Vereinfachung nutzt ORIGEN2 zusätzlich die Tatsache, dass die in der Übergangsmatrix auftretenden Reaktionsraten um mehrere Größenordnungen verschiedene Werte annehmen können. Insbesondere kommen viele kurzlebige Nuklide vor, die eine sehr geringe Halbwertszeit verglichen mit der Länge eines Abbrandschritts aufweisen. Diese nehmen daher während eines Abbrandschritts schnell eine Gleichgewichtskonzentration an, welche unabhängig von den übrigen Nukliden bestimmt werden kann.²⁹ Für die dann noch verbleibenden Nuklide löst ORIGEN2 numerisch den Abbrand mittels eines Matrix-Exponenten-Verfahrens (Croff, 1983).

Ähnlich wie bei MCMATH (siehe Abschnitt 4.1.3) wird der effektive Neutronenfluss während eines Abbrandschritts bei vorgegebener Leistungsdichte P über die aus den Spaltraten freigesetzte Energie E^j nach

$$\phi_{tot}(t) = \frac{6,24 \times 10^{18} \cdot P(t)}{\left(\sum_j E^j \cdot \sigma_f^j(t) \cdot N^j(t)\right)} \quad (4.14)$$

bestimmt, wobei der totale Neutronenfluss ϕ_{tot} in $[\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}]$, die Leistung P in $[\text{MW}]$, die Wirkungsquerschnitte für Spaltung σ_f in $[\text{barn}]$, die Konzentration N^j des Nuklids j in $[\text{cm}^{-3}]$ sowie die pro Spaltung freigesetzte Energie E^j in $[\text{MeV}/\text{Spaltung}]$ angegeben ist. Dabei verwendet ORIGEN2 für die deponierte Energie E^j die Beziehung 4.6 (Croff, 1983), welche mittlerweile auch in MCMATH zur Bestimmung der Spaltenergiefreisetzung zugrundegelegt wird.

²⁹Dies betrifft jedoch nur Nuklide ohne ein langlebiges Mutternuklid.

4.5.2 Vergleichsrechnung für MCODE und MCMATH

Für einen Vergleich von MCODE und MCMATH werden im Folgenden zwei Abbrandrechnungen für den selben Referenzbrennstoff verglichen. Untersucht wird hier ein für die in dieser Arbeit verfolgte Problemstellung typischer Brennstoff mit inerte Matrix auf der Basis von Yttrium stabilisiertem Zirkonium ((Y,Zr)O₂) bei einer Dichte von 5 g/cm³ mit einer Anfangskonzentration von 0,64 g/cm³ RPu (siehe Kap. 7).

Da beide Systeme zur Bestimmung der abbrandabhängigen effektiven Wirkungsquerschnitte MCNP verwenden und sich primär in der Berechnung des Abbrands unterscheiden, werden hier vorrangig die berechneten Nuklidkonzentrationen verglichen. Die für einen jeweiligen Abbrandschritt bestimmten Wirkungsquerschnitte sind aufgrund der gleichen Datenbasis praktisch identisch, bis auf Unterschiede, die sich auf die Differenzen in den berechneten Nuklidzusammensetzungen zurückführen lassen. Entsprechendes gilt für den Multiplikationsfaktor k_{∞} .³⁰

Unterschiede zwischen den Berechnungen lassen sich auf drei wesentliche Bereiche zurückführen. Erstens wird von ORIGEN2 ein Abbrandschritt in mehrere Mikroschritte unterteilt, in denen anhand der neuen Nuklidzusammensetzungen der Fluss bei vorgegebener Leistung neu bestimmt wird. MCMATH bestimmt demgegenüber einen mittleren Fluss für einen Abbrandschritt in einer iterativen Form, so dass über den Abbrandschritt die vorgegebene Leistung erzielt wird (siehe Abschnitt 4.3.1). Innerhalb der Abbrandschritte bestimmt ORIGEN2 die Nuklidkonzentrationen mittels eines numerischen Verfahrens, wobei insbesondere für kurzlebige Nuklide die jeweilige Gleichgewichtskonzentration eigenständig bestimmt wird.

Zweitens greifen die beiden Programmsysteme auf unterschiedliche Datensätze für die Bestimmung der Yields der berücksichtigten Spaltprodukte zurück. Drittens bestimmt MCODE den Abbrand im Rahmen eines Predictor-Corrector-Verfahrens (siehe hierzu Abschnitt 4.5.5), während in MCMATH zunächst abbrandabhängige Wirkungsquerschnitte bestimmt werden und auf der Basis dieser Querschnitte eine erneute Abbrandrechnung durchgeführt wird (siehe Abschnitt 4.3.3). Die sich aus diesen Unterschieden ergebenden Differenzen werden im Folgenden anhand der oben eingeführten Vergleichsrechnung diskutiert.

4.5.3 Vergleich der mit MCODE und MCMATH bestimmten Nuklidkonzentrationen

Die Tabellen 4.6 und 4.7 geben die mittels MCODE und MCMATH bestimmten und in MCNP explizit berücksichtigten Nuklidkonzentrationen N^i für die Aktinide bzw.

³⁰Bei EOL beträgt der mit MCODE bestimmte Multiplikationsfaktor für diesen Brennstoff 0,73089 mit einer Standardabweichung von 0,126%, für MCMATH ergibt sich 0,72974 mit $\sigma = 0,124\%$. Der relative Unterschied zwischen MCODE und MCMATH von 0,158% beläuft sich also lediglich auf ca. eine Standardabweichung, d. h. Unterschiede in den berechneten Nuklidzusammensetzungen führen auch bei EOL noch nicht zu einem signifikanten Unterschied in den berechneten Multiplikationsfaktoren.

Spaltprodukte wieder. Angegeben ist die Konzentration der einzelnen Nuklide bei EOL (450 kWd/cm^3) in $10^{24} \text{ Atomen/cm}^3$ sowie die Differenz zwischen beiden Werten in % der MCMATH-Werte.

Zunächst kann festgestellt werden, dass es eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den mit MCODE und MCMATH berechneten Nuklidzusammensetzungen gibt. Die Abweichung zwischen den Rechnungen ist für die Aktinide typischerweise geringer als 3,0%, für die Spaltprodukte geringer als 5%. Diese Werte sind vergleichbar zu den Unterschieden zwischen anderen Abbrand-Programmsystemen (siehe hierzu Abschnitt 5.1).

Abweichungen über 5% treten im Bereich der Aktinide nur für Nuklide mit einer im Vergleich zur Länge eines Abbrandschritts kurzen Halbwertszeit im Bereich von Tagen oder geringer auf (U-237, Np-238, Pu-243 und Am-242). Für diese sind die beobachtbaren Unterschiede auf die Bestimmung des mittleren Flusses in MCMATH bzw. ORIGEN2 zurückzuführen. Findet der Aufbau eines solchen Nuklids durch eine Neutronen induzierte Reaktion mit Wirkungsquerschnitt $\sigma_{j \rightarrow i}$ in einem Mutternuklid N^j statt,³¹ und vernachlässigt man Neutroneneinfänge im Nuklid selbst gegenüber dem Zerfall, so ergibt sich die Gleichgewichtskonzentration N_{equi}^i zu

$$N_{equi}^i = \frac{\sigma_{j \rightarrow i} \cdot \phi \cdot N^j}{\lambda_i},$$

mit der Zerfallskonstante λ_i . Dabei sind die Abbrandschritte typischerweise so gewählt, dass sich $\sigma_{j \rightarrow i}$ zwischen zwei Abbrandschritten nur um wenige Prozent verändert. Demgegenüber steigt bei den uranfreien Brennstoffen der mittlere Fluss am Ende des Abbrands sehr steil an, da bei gleicher vorgegebener Leistung die geringere Konzentration an spaltbaren Nukliden ausgeglichen werden muss. So liegt der mittlere Fluss bei den MCMATH-Rechnungen im Zeitschritt von 1140 auf 1200 FPD bei $5,9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ und steigt auf einen Wert von $6,7 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ im Zeitschritt von 1200 bis 1250 FPDs, d. h. um 13,6%. Da ORIGEN2 einen Abbrandschritt in mehrere Mikroschritte unterteilt, für welche jeweils ein eigener mittlerer Fluss bestimmt wird, ergibt sich am Ende eines Abbrandschritts in ORIGEN2 ein höherer Fluss, mit dem die Gleichgewichtskonzentration bestimmt wird. Dies führt bei den Berechnungen mit ORIGEN2 zu ca. 5–10% höheren Werten als bei MCMATH. Diese Abweichung betrifft dabei jedoch nur die Gleichgewichtskonzentration am Ende eines Zeitschritts. Die während eines Zeitschritts erzeugte Nuklidmenge, welche aufgrund der kurzen Halbwertszeit sofort in ein Tochternuklid weiter zerfällt, wird jedoch in der Summe konsistent bestimmt. Dies kann z. B. anhand der Kette Pu-242 $\xrightarrow{(n,\gamma)}$ Pu-243 $\xrightarrow{(\beta^-)}$ Am-243 gezeigt werden. Am-243 wird vorwiegend über den β^- -Zerfall des Pu-243 erzeugt. Trotz der relativ hohen Abweichung der Konzentration des Pu-243 am Ende eines Abbrandschritts stimmen die Rechnungen von MCODE und MCMATH für Am-243 bis auf 0,2% überein.

Das einzige Nuklid mit einer deutlich höheren Abweichung ist das Pu-244. Dieses wird praktisch ausschließlich über den Einfang in Pu-243 aufgebaut. Der Zerfall aus Cm-248

³¹Dies ist z. B. der wesentliche Produktionspfad für Np-238, Pu-243 und Am-242. Für U-237 kann neben Einfang in U-236 auch die (n,2n)-Reaktion in U-238 relevant sein. Auch diese führt jedoch zu einem flussabhängigen Produktionsterm.

spielt praktisch keine Rolle, da dieses Nuklid selbst nur in extrem geringen Konzentrationen aufgebaut wird und eine vergleichsweise große Halbwertszeit aufweist. Die hier zwischen MCODE und MCMATH verbleibenden Unterschiede konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht abschließend geklärt werden.

Eine vergleichbare Situation wie für die Aktinide ergibt sich hinsichtlich der Spaltprodukte. Auch hier liegen die typischen Abweichungen im Bereich von zwei bis vier Prozent. Für Nuklide mit kurzen Halbwertszeiten oder sehr hohen Einfangsquerschnitten treten auch hier Abweichungen in der Größenordnung von 10% auf, die sich auf Unterschiede in der Berechnung des Neutronenflusses zurückführen lassen. Darüber hinaus kommt es im Bereich von Nukliden mit einem geringen Yield zu deutlich größeren Abweichungen von 20–100%.³² Diese lassen sich eindeutig auf Unterschiede in den von MCODE bzw. MCMATH verwendeten Yield-Daten zurückführen.³³ Dabei handelt es sich um eine typische Abweichung zwischen den in verschiedenen evaluierten Bibliotheken (ENDF, JEF, JENDL) vorliegenden Größen. Dieser Einfluss wird im nächsten Abschnitt genauer diskutiert.

³²Für Nuklide mit Massenzahlen im Bereich unter 87, zwischen 109 und 128 sowie oberhalb von 150 beträgt der kumulative Yield für diese Isobare bei einer thermischen Spaltung von Pu-239 weniger als ein Prozent (siehe Abbildung 4.3).

³³So ergibt sich in ORIGEN2 bspw. für das leichteste untersuchte Spaltprodukt Se-77 beim wesentlich zur Spaltung beitragenden Nuklid Pu-239 ein totaler Yield von $6,707 \times 10^{-5}$, der in MCMATH verwendete Wert aus JEF 2.2 beträgt demgegenüber $7,042 \times 10^{-5}$. Ab einer Massenzahl von 168 liegen in ORIGEN2 keine Yieldwerte mehr vor, so dass das schwerste berücksichtigte Spaltprodukt Er-170 in ORIGEN2 lediglich durch Neutroneneinfangsprozesse aus leichteren Nukliden aufgebaut werden kann. In MCMATH beträgt der aus JEF 2.2 übernommene Yield für die Spaltung in Pu-239 noch $3,010 \times 10^{-8}$. Angesichts der sehr geringen absoluten Yield-Werte sind dabei große relative Unterschiede zwischen den betrachteten Nukliden nachvollziehbar.

	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]		$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]
U234	3,774e-07	3,799e-07	-0,7	Pu243	4,883e-08	4,390e-08	11,2
U235	1,375e-07	1,379e-07	-0,3	Pu244	1,131e-08	2,699e-08	-58,1
U236	1,175e-07	1,167e-07	0,7	Am241	3,769e-06	3,859e-06	-2,3
U237	5,765e-10	5,459e-10	5,6	Am242	2,859e-08	2,571e-08	11,2
U238	8,325e-10	8,438e-10	-1,3	Am242m	5,356e-08	5,529e-08	-3,1
Np237	3,669e-08	3,686e-08	-0,5	Am243	4,013e-05	4,021e-05	-0,2
Np238	2,829e-10	2,550e-10	10,9	Cm242	5,264e-06	5,276e-06	-0,2
Pu237	5,608e-11	5,450e-11	2,9	Cm243	1,785e-07	1,800e-07	-0,8
Pu238	1,723e-05	1,747e-05	-1,4	Cm244	3,465e-05	3,465e-05	0,0
Pu239	1,211e-05	1,238e-05	-2,2	Cm245	2,231e-06	2,189e-06	1,9
Pu240	1,171e-04	1,152e-04	1,6	Cm246	8,147e-07	8,001e-07	1,8
Pu241	7,112e-05	7,213e-05	-1,4	Cm247	1,639e-08	1,616e-08	1,4
Pu242	1,528e-04	1,531e-04	-0,2	Cm248	1,912e-09	1,885e-09	1,4

Tabelle 4.6: Vergleich der mit MCODE bzw. MCMATH berechneten Konzentrationen N^i der Aktinide für RPu-IMF mit 0,64 g/cm³ Plutonium Anfangskonzentration bei EOL (450 kWd/cm³).

Tabelle 4.7: Vergleich Spaltprodukte MCODE-MCMATH

	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]		$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]
Se77	6,307e−08	8,018e−08	−21,3	Xe134	8,865e−05	8,727e−05	1,6
Br81	1,316e−06	1,541e−06	−14,6	Xe135	2,965e−09	3,446e−09	−14,0
Kr82	7,498e−08	7,593e−08	−1,3	Xe136	1,327e−04	1,297e−04	2,3
Kr83	2,052e−06	1,923e−06	6,7	Cs133	5,892e−05	5,724e−05	2,9
Kr84	6,066e−06	5,737e−06	5,7	Cs134	1,193e−05	1,139e−05	4,7
Kr85	1,093e−06	1,132e−06	−3,4	Cs135	3,253e−05	3,223e−05	0,9
Rb85	4,491e−06	4,426e−06	1,5	Cs137	7,215e−05	7,056e−05	2,3
Rb87	1,022e−05	9,828e−06	4,0	Ba134	4,444e−06	4,191e−06	6,0
Sr90	2,029e−05	1,934e−05	4,9	Ba135	5,521e−08	5,002e−08	10,4
Y89	2,456e−03	2,456e−03	0,0	Ba136	2,896e−06	2,751e−06	5,3
Zr90	1,134e−02	1,134e−02	0,0	Ba137	2,898e−06	2,847e−06	1,8
Zr91	2,483e−03	2,484e−03	0,0	Ba138	6,992e−05	7,180e−05	−2,6
Zr92	3,823e−03	3,822e−03	0,0	Ba140	9,667e−07	9,575e−07	1,0
Zr93	4,437e−05	4,361e−05	1,7	La139	6,636e−05	5,902e−05	12,4
Zr94	3,873e−03	3,873e−03	0,0	La140	1,397e−07	1,361e−07	2,7
Zr95	3,827e−06	3,807e−06	0,5	Ce140	6,488e−05	6,330e−05	2,5
Zr96	6,685e−04	6,677e−04	0,1	Ce141	2,129e−06	2,123e−06	0,3
Nb95	2,100e−06	2,082e−06	0,9	Ce142	5,606e−05	5,879e−05	−4,6
Mo95	4,369e−05	4,388e−05	−0,4	Ce144	1,429e−05	1,415e−05	1,0
Mo96	4,264e−06	4,169e−06	2,3	Pr141	5,543e−05	5,430e−05	2,1
Mo97	6,287e−05	5,685e−05	10,6	Pr143	7,939e−07	7,842e−07	1,2
Mo98	6,471e−05	6,632e−05	−2,4	Nd142	1,615e−06	1,560e−06	3,5
Mo99	2,239e−07	2,116e−07	5,8	Nd143	3,109e−05	3,090e−05	0,6
Mo100	7,540e−05	7,539e−05	0,0	Nd144	5,034e−05	4,955e−05	1,6
Tc99	5,676e−05	5,405e−05	5,0	Nd145	2,947e−05	2,931e−05	0,6
Ru100	1,504e−05	1,442e−05	4,3	Nd146	3,657e−05	3,597e−05	1,7
Ru101	6,412e−05	6,503e−05	−1,4	Nd147	3,177e−07	3,118e−07	1,9
Ru102	7,727e−05	7,725e−05	0,0	Nd148	2,085e−05	2,049e−05	1,8
Ru103	3,353e−06	3,643e−06	−8,0	Nd150	1,231e−05	1,206e−05	2,1

Tabelle 4.7: Forts.

	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]		$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]
Ru104	7,438e−05	7,416e−05	0,3	Pm147	5,549e−06	5,558e−06	−0,2
Ru105	1,492e−08	1,502e−08	−0,7	Pm148	8,170e−08	7,682e−08	6,4
Ru106	2,374e−05	2,382e−05	−0,3	Pm148m	2,808e−08	2,860e−08	−1,8
Rh103	3,937e−05	4,162e−05	−5,4	Pm149	8,280e−08	7,887e−08	5,0
Rh105	1,031e−07	1,049e−07	−1,7	Pm151	1,454e−08	1,389e−08	4,7
Pd104	3,317e−05	3,476e−05	−4,6	Sm147	2,668e−06	2,665e−06	0,1
Pd105	5,730e−05	5,855e−05	−2,1	Sm148	1,012e−05	1,008e−05	0,4
Pd106	4,483e−05	4,428e−05	1,2	Sm149	4,335e−08	4,730e−08	−8,4
Pd107	4,483e−05	4,320e−05	3,8	Sm150	1,586e−05	1,580e−05	0,4
Pd108	3,309e−05	3,198e−05	3,5	Sm151	4,240e−07	4,303e−07	−1,5
Ag109	1,259e−05	1,356e−05	−7,2	Sm152	6,370e−06	6,345e−06	0,4
Pd110	1,043e−05	1,031e−05	1,2	Sm153	1,147e−07	1,041e−07	10,2
Ag111	6,000e−08	5,441e−08	10,3	Sm154	3,859e−06	3,986e−06	−3,2
Cd110	1,403e−05	1,499e−05	−6,4	Eu151	1,797e−10	1,893e−10	−5,1
Cd111	5,246e−06	4,808e−06	9,1	Eu152	1,833e−10	1,650e−10	11,1
Cd112	2,774e−06	2,363e−06	17,4	Eu153	8,898e−06	8,901e−06	−0,0
Cd113	5,016e−09	5,822e−09	−13,8	Eu154	1,882e−06	1,884e−06	−0,1
Cd114	2,507e−06	2,398e−06	4,6	Eu155	5,461e−07	5,598e−07	−2,5
In115	1,625e−07	1,760e−07	−7,7	Eu156	8,052e−07	8,143e−07	−1,1
Sn116	5,674e−07	5,973e−07	−5,0	Eu157	5,142e−09	5,641e−09	−8,9
Sn117	4,671e−07	5,582e−07	−16,3	Gd152	3,069e−09	2,982e−09	2,9
Sn118	5,025e−07	5,084e−07	−1,2	Gd154	2,302e−07	2,320e−07	−0,8
Sb121	4,205e−07	6,584e−07	−36,1	Gd155	1,944e−09	2,173e−09	−10,5
Te122	6,282e−08	9,752e−08	−35,6	Gd156	1,169e−05	1,323e−05	−11,6
Sb123	4,799e−07	1,182e−06	−59,4	Gd157	8,123e−09	1,015e−08	−20,0
Sn124	6,478e−07	1,738e−06	−62,7	Gd158	3,175e−06	4,496e−06	−29,4
Sb125	7,589e−07	1,783e−06	−57,4	Tb159	4,071e−07	7,574e−07	−46,3
Te125	3,935e−07	8,393e−07	−53,1	Tb160	2,381e−08	4,297e−08	−44,6
Te128	7,641e−06	9,622e−06	−20,6	Dy160	4,908e−08	8,705e−08	−43,6

Tabelle 4.7: Forts.

	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]		$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]
Te130	2,480e-05	2,616e-05	-5,2	Dy161	6,300e-08	2,031e-07	-69,0
I127	3,990e-06	5,222e-06	-23,6	Dy162	5,359e-08	2,335e-07	-77,1
I129	1,312e-05	1,503e-05	-12,7	Dy163	5,359e-08	2,784e-07	-80,8
I131	3,532e-07	3,403e-07	3,8	Dy164	1,158e-08	6,875e-08	-83,2
Xe128	5,294e-07	6,918e-07	-23,5	Ho165	3,410e-08	2,235e-07	-84,7
Xe130	9,106e-07	9,666e-07	-5,8	Er166	1,095e-08	8,039e-08	-86,4
Xe131	2,084e-05	2,061e-05	1,1	Er167	2,375e-10	2,298e-09	-89,7
Xe132	7,762e-05	7,357e-05	5,5	Er170	4,306e-15	7,688e-10	-100,00
Xe133	4,633e-07	4,540e-07	2,04				

Tabelle 4.7: Vergleich der mit MCODE bzw. MCMATH berechneten Konzentrationen N^i der Spaltprodukte für einen uranfreien Brennstoff mit 0,64 g/cm³ RPu Anfangskonzentration bei EOL (450 kWd/cm³).

4.5.4 Einfluss der verwendeten Yelddaten

Der Einfluss der Yelddaten auf die Genauigkeit der Berechnungen lässt sich anhand einer Vergleichsrechnung demonstrieren, bei der derselbe Brennstoff mit einem anfänglichen Gehalt an Gadolinium ($0,06 \text{ g/cm}^3$) berechnet wurde. Tabelle 4.8 zeigt die sich ergebenden Nuklidkonzentrationen für die in MCMATH berücksichtigten Spaltprodukte mit einer größeren Massenzahl als Gadolinium für die Brennstoffe mit und ohne anfänglicher Gadoliniumkonzentration.

Für den Fall ohne Gadolinium ergeben sich ab einer Massenzahl von 155 signifikante Abweichungen von über 10%. Mit anfänglichem Gadoliniumgehalt dagegen weisen alle Gadoliniumisotope, außer Gd-155 und Gd-157, eine Abweichung von weniger als 2,0% auf. Die Isotope Gd-155 und Gd-157 weisen einen großen Einfangsquerschnitt auf, über 99% ihres Anfangsgehalts wird daher im Verlaufe des Abbrands zu höheren Isotopen verschoben. Die Restkonzentration dieser beiden Isotope ist durch eine Gleichgewichtssituation aus Neuproduktion (durch Spaltung und Neutroneneinfang in den leichteren Isotopen) und Abbau durch Neutroneneinfang bestimmt. Dabei ist die höhere Abweichung in Gd-157 wesentlich auf die in MCMATH höhere Neuproduktion durch Spaltung zurückzuführen (vergleiche hierzu die Gleichgewichtssituation im Brennstoff ohne anfänglichen Gd-Gehalt). Die übrigen Unterschiede bei den Gadoliniumisotopen sind durch leichte Differenzen in den effektiven Wirkungsquerschnitten zwischen MCODE und MCMATH zu erklären. Auch für die Elemente mit höherer Ordnungszahl stimmen die Werte bei Berücksichtigung der auf die Unterschiede in den Yields zurückzuführenden Differenzen sehr gut überein. Damit sind alle relevanten Unterschiede zwischen MCMATH und MCODE (und damit bzgl. der Bestimmung des Abbrands zu ORIGEN2) auf zugrunde liegende Unterschiede in den verwendeten Datensätzen zurückgeführt. Die Lösung der Abbrandgleichungen im Rahmen von MCMATH ist also von vergleichbarer Qualität wie bei anderen international zur Verfügung stehenden Programmsystemen.

RPu-IMF, 0,64 g(Pu)/cm ³				RPu-IMF, 0,64 g(Pu)/cm ³ , 0,06g(Gd)/cm ³				
	EOL				BOL	EOL		
	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]		N^i [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCODE})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$N^i(\text{MCMATH})$ [10 ²⁴ at/cm ³]	$\Delta N^i/N^i$ [%]
Gd152	3,069e−09	2,982e−09	2,9	Gd152	4,596e−07	2,591e−07	2,592e−07	−0,1
Gd154	2,302e−07	2,320e−07	−0,8	Gd154	5,009e−06	3,385e−06	3,391e−06	−0,2
Gd155	1,944e−09	2,173e−09	−10,5	Gd155	3,401e−05	1,584e−08	1,635e−08	−3,2
Gd156	1,169e−05	1,323e−05	−11,6	Gd156	4,704e−05	8,394e−05	8,537e−05	−1,7
Gd157	8,123e−09	1,015e−08	−19,9	Gd157	3,596e−05	2,258e−08	2,538e−08	−11,1
Gd158	3,175e−06	4,496e−06	−29,4	Gd158	5,708e−05	9,901e−05	1,004e−04	−1,4
Tb159	4,071e−07	7,574e−07	−46,3	Tb159		6,135e−06	6,495e−06	−5,5
Tb160	2,381e−08	4,297e−08	−44,6	Tb160		2,296e−07	3,753e−07	−38,8
Gd160	2,114e−07	6,039e−07	−65,0	Gd160	5,023e−05	4,970e−05	5,011e−05	−0,8
Dy160	4,908e−08	8,705e−08	−43,6	Dy160		7,968e−07	8,141e−07	−2,1
Dy161	6,300e−08	2,031e−07	−69,0	Dy161		7,620e−07	9,653e−07	−21,1
Dy162	5,359e−08	2,335e−07	−77,1	Dy162		5,180e−07	7,190e−07	−28,0
Dy163	5,359e−08	2,784e−07	−80,8	Dy163		3,835e−07	6,211e−07	−38,2
Dy164	1,158e−08	6,875e−08	−83,2	Dy164		7,164e−08	1,314e−07	−45,5
Ho165	3,410e−08	2,235e−07	−84,7	Ho165		1,445e−07	3,367e−07	−57,1
Er166	1,095e−08	8,039e−08	−86,4	Er166		2,976e−08	1,005e−07	−70,4
Er167	2,375e−10	2,298e−09	−89,7	Er167		4,715e−10	2,533e−09	−81,4
Er170	4,306e−15	7,688e−10	−100,0	Er170		4,466e−15	7,723e−10	−100,0

Tabelle 4.8: Vergleich der mit MCODE bzw. MCMATH berechneten Konzentrationen N^i bei BOL und EOL (450 kWd/cm³) für ausgewählte Spaltprodukte bei einem uranfreien Brennstoff mit 0,64 g/cm³ RPu Anfangskonzentration sowie einem Vergleichsbrennstoff mit zusätzlich 0,06g/cm³ Gadolinium als brennbarem Neutronengift.

4.5.5 Einfluss der Häufigkeit der Berechnung der Wirkungsquerschnitte auf die berechneten Nuklidkonzentrationen

Eine systematische Fehlerquelle bei der Durchführung von Zellabbrandrechnungen auf der Basis einer iterativen Kopplung eines Neutronentransport-Programms und einer Abbrandroutine ergibt sich aus der prinzipiellen Abweichung der für die Abbrandrechnung verwendeten Wirkungsquerschnitte von den zum Abbrandzeitpunkt tatsächlich vorliegenden Werten (siehe Kapitel 4.3.3). Diese ist wesentlich darauf zurückzuführen, dass die Wirkungsquerschnitte jeweils mit der zum Beginn eines Abbrandschritts vorliegenden Nuklidkonzentration bestimmt werden müssen und anschließend für den gesamten Abbrandschritt konstant gehalten werden. Sowohl in MCODE wie in MCMATH werden dabei Verfahren eingesetzt, um die daraus entstehenden systematischen Abweichungen auf ein tolerierbares Maß zu reduzieren.

In MCODE wird hierzu ein Predictor-Corrector-Verfahren eingesetzt. Dazu werden zunächst mit den zum Beginn eines Abbrandschritts vorliegenden Nuklidkonzentrationen $\vec{N}(t)$ effektive Wirkungsquerschnitte σ_{eff} bestimmt. Mit diesen wird eine neue Nuklidzusammensetzung $\vec{N}(t+\Delta t)$ für das Ende des Abbrandschritts ($t+\Delta t$) berechnet (predictor-Schritt). Für diese zum Ende des Abbrandschritts gehörenden Nuklidkonzentrationen werden dann nochmal effektive Wirkungsquerschnitte σ_{eff}^* berechnet. Unter Verwendung dieser Querschnitte wird nun nochmals der Abbrandschritt $t \rightarrow t+\Delta t$ berechnet, man erhält eine neue Nuklidkonzentration $\vec{N}^*(t+\Delta t)$ für das Ende des Abbrandschritts (corrector-Schritt). Als resultierende Nuklidkonzentration für das Ende dieses Abbrandschritts und damit als Start-Konzentration für das nächste Abbrand-Intervall werden schließlich die mittleren Nuklidkonzentrationen $(\vec{N}(t+\Delta t) + \vec{N}^*(t+\Delta t)) / 2$ verwendet.

Mit Hilfe dieses Verfahrens kann der systematische Fehler bei der Bestimmung der Nuklidkonzentrationen um etwa eine Größenordnung reduziert werden (siehe Xu (2003) und Tabelle 4.9). Der Nachteil dieses Verfahrens liegt aber darin, dass für jeden Abbrandschritt zwei MCNP-Läufe zur Berechnung der effektiven Wirkungsquerschnitte (zu Beginn und am Ende eines Abbrandschritts) benötigt werden. Da die Berechnung der Wirkungsquerschnitte mit MCNP ca. zwei Größenordnungen mehr Rechenzeit beansprucht als die Durchführung der Abbrandrechnung wird bei Verwendung des Predictor-Corrector-Verfahrens die Rechenzeit praktisch verdoppelt. Wird die Genauigkeit der erzielten Ergebnisse auf die dafür notwendige Rechenzeit bezogen, so müssen die Ergebnisse bei Anwendung eines Predictor-Corrector-Verfahrens näherungsweise mit einer Rechnung ohne Anwendung dieses Verfahrens, jedoch mit doppelter Anzahl an Abbrandintervallen (und damit gleicher Anzahl an MCNP-Läufen) verglichen werden. Die Ergebnisse einer solchen Vergleichsrechnung sind in Tabelle 4.9 zusammengefasst.³⁴

Angegeben sind Nuklidkonzentrationen bei EOL für einen uranfreien Brennstoff mit einer Anfangskonzentration von 0,64 g/cm³ RPu. Variiert wurde die Häufigkeit der Neuberechnung von Wirkungsquerschnitten (einfache und doppelte Anzahl an Schritten). Im

³⁴Bei den hierfür durchgeführten Berechnungen wird in MCNP eine statistische Genauigkeit der berechneten Wirkungsquerschnitte für Spaltung und Neutroneneinfang von typischerweise 0,5%, für (n,2n)-Reaktionen von ca. 2% und von (n,3n)-Reaktionen von ca. 20% erreicht.

	MCODE				MCMATH				
Methode	doppelt, PC	einfach, PC	doppelt	einfach	doppelt, gemittelt	doppelt	einfach, geviertelt	einfach, gemittelt	einfach
CPU-Bedarf	≈ 4	≈ 2	≈ 2	1	≈ 2	2	≈ 1	≈ 1	1
Pu239	1,203e−5	1,211e−5 (0,7%)	1,278e−5 (6,2%)	1,352e−5 (12,4%)	1,222e−5 (1,6%)	1,278e−5 (6,2%)	1,239e−5 (3,0%)	1,238e−5 (2,9%)	1,357e−5 (12,8%)
Pu240	1,175e−4	1,171e−4 (−0,3%)	1,158e−4 (−1,4%)	1,139e−4 (−3,1%)	1,164e−4 (−0,9%)	1,157e−4 (−1,5%)	1,153e−4 (−1,9%)	1,152e−4 (−2,0%)	1,137e−4 (−3,2%)
Pu241	7,068e−5	7,112e−5 (0,6%)	7,234e−5 (2,4%)	7,423e−5 (5,0%)	7,138e−5 (1,0%)	7,231e−5 (2,3%)	7,207e−5 (2,0%)	7,213e−5 (2,1%)	7,421e−5 (5,0%)
Pu242	1,536e−4	1,528e−4 (−0,5%)	1,499e−4 (−2,4%)	1,465e−4 (−4,6%)	1,532e−4 (−0,3%)	1,500e−4 (−2,3%)	1,531e−4 (−0,3%)	1,531e−4 (−0,3%)	1,463e−4 (−4,8%)

Tabelle 4.9: Vergleich der Konzentrationen N^i der vier bzgl. Neutronenabsorption bei EOL wichtigsten Nuklide für RPu-IMF mit 0,64 g/cm³ Plutonium Anfangskonzentration. Variiert wurde die Häufigkeit der Neuberechnung von Wirkungsquerschnitten (einfache und doppelte Anzahl an Schritten) sowie die Anwendung des Predictor-Corrector-Verfahrens (PC) bei MCODE. Die angegebenen relativen Abweichungen beziehen sich auf die Werte von MCODE mit doppelter Anzahl an Schritten und Verwendung des Predictor-Corrector-Verfahrens.

einfachen Fall wurden die Wirkungsquerschnitte bei 0, 5, 120, 240, 360, 480, 600, 720, 840, 960, 1080, 1200, 1250 FPD berechnet, bei doppelter Genauigkeit wurde die Schrittweite für alle Schritte bis auf den Übergang auf 5 FPD halbiert. Zusätzlich wurde bei MCODE das Predictor-Corrector-Verfahren (PC) nur bei zwei Fällen verwendet.

In MCMATH wurden ebenfalls bei den entsprechenden Zeitpunkten neue Wirkungsquerschnitte mit MCNP berechnet. Bei Verwendung des Mittelungsverfahrens in MCMATH wurden zusätzlich Querschnitte für die jeweilige Intervallmitte in *Mathematica* interpoliert (siehe Kapitel 4.3.3), im Fall der einfachen Schrittweite wurde weiterhin eine Rechnung mit einem Viertel der einfachen Schrittweite durchgeführt. Angegeben sind die so bestimmten Nuklidkonzentrationen für die vier wichtigsten Pu-Isotope bei EOL sowie die relativen Abweichungen, jeweils bezogen auf den genauesten Wert der MCODE Berechnungen (doppelt, PC).

Während bei MCODE eine Verdopplung der Anzahl der Schritte (doppelt) die relativen Abweichungen der berechneten Nuklidkonzentrationen ca. halbiert, führt die Verwendung des Predictor-Corrector-Verfahrens bei einfacher Schrittweite (einfach, PC) bereits zu einer Abnahme der relativen Abweichungen um etwa eine Größenordnung. Die relativen Abweichungen zum Fall einer weiteren Verdopplung der Anzahl der Schritte bei Verwendung des Predictor-Corrector-Verfahrens (doppelt, PC) liegen mit weniger als 1% in der Größenordnung der Genauigkeit der berechneten Wirkungsquerschnitte, so dass eine weitere Steigerung der Genauigkeit in der Berechnung der Nuklidkonzentrationen praktisch nicht erreicht werden kann.

Im Vergleich zu MCODE liefert MCMATH sowohl bei einfacher wie doppelter Anzahl an Schritten praktisch die gleichen relativen Abweichung wie MCODE. Bereits bei einfacher Verwendung des Mittelungsverfahrens (einfach, gemittelt) ergeben sich trotz praktisch unverändertem Rechenzeitbedarf nur noch relative Abweichungen in der Größenordnung der Berechnungen mit doppelter Anzahl an Schritten. Eine weitere Unterteilung der Abbrandintervalle im Rahmen der Mittelung in *Mathematica* (einfach, geviertelt) führt jedoch nicht zu einer weiteren Reduzierung der relativen Abweichungen. Erst bei der Anwendung des Mittelungsverfahrens bei der doppelten Anzahl an Schritten (doppelt, gemittelt) sind erneut um einen Faktor zwischen zwei und fünf kleinere relative Abweichungen zum genauesten MCODE-Ergebnis feststellbar.

Insgesamt kann damit festgehalten werden, dass die Verwendung des Mittelungsverfahrens zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte im Rahmen von MCMATH eine sehr Rechenzeit-effiziente Methode zur Steigerung der Genauigkeit der berechneten Nuklidkonzentrationen darstellt. Bereits bei der gewählten einfachen Schrittweite führt die Verwendung des Mittelungsverfahrens ohne eine relevante Steigerung der Rechenzeit zu relativen Abweichungen bei den wichtigen Pu-Isotopen von nur 2–3% gegenüber einer Berechnung mit MCODE, welche die vierfache Rechenzeit benötigt. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher an den hier genannten einfachen Schrittweiten bei Verwendung des Mittelungsverfahrens festgehalten, da die hiermit erreichbare Genauigkeit bei möglichst geringer Rechenzeit als akzeptabel angesehen werden kann.

Kapitel 5

Validierung des Programmsystems MCMATH

Für die Berechnung von Kernausslegungen bzw. Brennstoffen sind Computersimulationen unabdingbar. Zur Erhöhung der Verlässlichkeit der damit gemachten Aussagen ist eine unabhängige Validierung der verwendeten Programme unerlässlich, welche möglichst die Berechnung durch verschiedene Personen, Programme und Methoden umfassen sollte (International Atomic Energy Agency, 2002, S. 5).

Um eine Aussage bzgl. der Genauigkeit der mit MCMATH durchgeführten Abbrandrechnungen zu erhalten, muss das System darum geeignet evaluiert werden. So wurde bspw. eine starke Abhängigkeit der berechneten Reaktivitätskoeffizienten sowohl von den verwendeten Rechenmethoden wie den zugrundeliegenden nuklearen Daten festgestellt (Pelloni et al., 1998). Hierzu können prinzipiell verschiedene Verfahren angewendet werden (Deutsches Institut für Normung e.V., 1994). So können Vergleiche mit experimentellen Daten durchgeführt werden, oder es kann der Vergleich mit anderen, bereits validierten Programmsystemen erfolgen.

Eine erste grundsätzliche Validierung einer Vorläuferversion des Programmsystems MCMATH wurde bereits von Pistner (1998) vorgenommen. Wegen der seither durchgeführten umfangreichen Änderungen und Ergänzungen, sowie aufgrund der neu hinzugekommenen Berechnungsmöglichkeiten (Reaktivitätskoeffizienten) ist eine erneute Validierung jedoch obligatorisch. Angesichts des angestrebten Untersuchungsziels der Berechnung von uranfreien Brennstoffen, für die praktisch noch keine experimentellen Befunde vorliegen, und aufgrund der Tatsache, dass beim Vergleich mit experimentellen Daten eine sehr spezifische Nachrechnung der verbundenen konkreten Bestrahlungsgeschichte erforderlich ist, wird im Rahmen dieser Arbeit der Ansatz eines Vergleichs mit anderen existierenden Rechensystemen verfolgt.

Dazu werden drei internationale Benchmarks zur Validierung herangezogen, bei denen einmal die abbrandabhängige Reaktivität von MOX-Brennstoffen bestimmt wird (OECD/NEA, 2003a,b). Zum zweiten werden die Moderator-dichte-Koeffizienten (Void-Koeffizienten, MVC) verschiedener MOX-Brennstoffe ermittelt (OECD/NEA, 1995b).

Schließlich werden Berechnungen zum Vergleich mit einem internationalen Benchmark zu IMF-Brennstoffen durchgeführt (Paratte et al., 2000, 2001).

5.1 OECD/NEA-Benchmark: Zell-Abbrandrechnungen für MOX-Brennstoffe

Bereits im Rahmen von Pistner (1998) wurde ein erster Benchmark der Vorläuferversion des Programmsystems MCMATH gemäß OECD/NEA (1995a) durchgeführt. Dabei wurde bereits eine gute Übereinstimmung der mit MCMATH berechneten Daten mit denen der Benchmark-Teilnehmer festgestellt. Systematische Abweichungen ließen sich auf Unterschiede in den berechneten effektiven Wirkungsquerschnitten zurückführen. Diese waren wiederum auf die Verwendung von MCNP-Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückzuführen, welche für andere als die untersuchten Temperaturen erstellt worden waren. Mit der breiteren Verfügbarkeit von Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken bei unterschiedlichen Temperaturen (siehe Anhang F) und deren Implementierung in MCMATH (siehe Abschnitt 4.2.2) konnte dieses Problem größtenteils gelöst werden. Um dies zu verifizieren, wurde ein aktuellerer Benchmark der OECD für MOX-Brennstoffe herangezogen (OECD/NEA, 2003a,b). Die Ergebnisse sollen im Folgenden knapp dargestellt werden.

Ziel des Phase IV-B Benchmarks¹ der OECD/NEA war eine Überprüfung der gegenwärtig verwendeten Verfahren und Daten zur Berechnung der abbrandabhängigen Reaktivität von MOX-Brennstoffen mit unterschiedlicher anfänglicher Plutonium-Zusammensetzung. Der Benchmark umfasste dabei drei verschiedene Modellanforderungen: eine einfache Zell-Abbrandrechnung, eine Makrozellrechnung basierend auf einem MOX-Brennelement mit Brennstäben unterschiedlicher Brennstoffzusammensetzung im unendlichen Gitter (siehe auch Abbildung 5.1) sowie einer Superzell-Rechnung, aufgebaut aus einer Makrozelle aus MOX- und drei Makrozellen mit Uran-Brennstoff. Mit der gegenwärtig vorliegenden Version von MCMATH können lediglich Zell-Abbrandrechnungen durchgeführt werden.² Daher wurden im Rahmen dieser Arbeit nur die auf Zell-Abbrandrechnungen basierenden Ergebnisse dieses Benchmarks herangezogen. Zum Vergleich mit den MCMATH-Ergebnissen stehen dafür neun verschiedene Ergebnisse von acht Institutionen aus sieben Ländern zur Verfügung. Dabei wurden sowohl deterministische wie stochastische Verfahren verwendet. An nuklearen Daten wurden die Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken ENDF/B (Version IV und VI), JEF 2.2 und JENDL 3.2 von den Benchmark-Teilnehmern genutzt.³

¹In einer Phase IV-A sollten für vorgegebene Nuklidzusammensetzungen die sich ergebenden Multiplikationsfaktoren bestimmt werden. Eine Nachrechnung dieses Benchmark mit MCNP ergab eine — im Rahmen der zwischen den Benchmark-Teilnehmern erzielten Genauigkeiten — vollständige Übereinstimmung der MCNP-Ergebnisse mit den Benchmarkergebnissen. Da Monte-Carlo Verfahren zur Bestimmung der Reaktivität bei vorgegebener Nuklidzusammensetzung praktisch als Referenzverfahren verwendet werden, ist dies auch nicht weiter überraschend. Die Ergebnisse werden daher hier nicht im Detail diskutiert.

²Die Modellierung von Makrozellen aus Brennstab- bzw. Brennelementgittern stellt dabei in MCNP keine größeren Probleme dar. Die Auswertung von zellabhängigen Wirkungsquerschnitten und ein zellabhängiger Abbrand sind in den *Mathematica*-Routinen gegenwärtig jedoch noch nicht implementiert.

³Lediglich ein Teilnehmer (ORNL, USA) verwendete auch Wirkungsquerschnitte auf der Basis von

5.1.1 Spezifikationen des Benchmarks (Phase IV-B)

Untersucht werden zwei MOX-Brennstoffe, im Benchmark mit MOX-A und MOX-B bezeichnet, einer mit 8,0% Plutonium (5,136% Pu-fis) aus der ersten Wiederaufarbeitung von Uran-Brennstoff, ein zweiter mit 3,95% Plutonium (3,709% Pu-fis) und einer Isotopenzusammensetzung, die derjenigen von militärischem Plutonium entspricht (siehe Tabelle 5.1), d. h. MOX-A entspricht etwa dem in dieser Arbeit untersuchten RPu-MOX, MOX-B etwa demjenigen von WPu-MOX (vergleiche Kapitel 7 und Tabelle 2.1). Beide Brennstoffe verwenden abgereichertes Uran. Die Abbrandrechnungen umfassen drei Zyklen von jeweils 420 FPD entsprechend einem Abbrand beim Ende eines Zyklus (end of cycle, EOC) von 16 MWd/kg(HM). Weiterhin wurde eine lastfreie Zeit von 30 Tagen zwischen den drei Zyklen sowie eine Abklingzeit von fünf Jahren festgelegt. Bestimmt werden neben der abbrandabhängigen Reaktivität die Konzentrationen von 17 Aktiniden, die zusätzlich in die Gruppe der majoren Aktinide (Uran, Plutonium, Np-237, Am-241 und Am-243) sowie der minoren Aktinide (Am-242m und Curiumisotope) unterteilt werden, sowie von 15 Spaltprodukten (s. u.). Angaben zu den Multiplikationsfaktoren werden bei Ende der drei Zyklen und nach fünf Jahren Abklingzeit bestimmt.

Isotopenzusammensetzung MOX-Benchmark				
	Anteil Pu [%]			Anteil U [%]
Nuklid	MOX-A	MOX-B	Nuklid	Uran
Pu-238	2,5	0,05	U-234	0,00119
Pu-239	54,7	93,6	U-235	0,25000
Pu-240	26,1	6,0	U-238	99,74881
Pu-241	9,5	0,3		
Pu-242	7,2	0,05		

Tabelle 5.1: Isotopenzusammensetzung von Pu und U im Rahmen des OECD/NEA Benchmark für Zell-Abbrandrechnungen. Alle Angaben gemäß OECD/NEA (2003b).

Die Einheitszelle für die Zell-Abbrandrechnungen ist aus dem Brennstoff mit einem Pellet-radius von 0,410 cm und dem Cladding mit einem Außenradius von 0,475 cm sowie dem Moderator aufgebaut. Der Brennstababstand beträgt 1,3127 cm. Als Hüllrohrmaterial (Cladding) ist Zircalloy 2 bei einer Dichte von 5,8736 g/cm³ vorgegeben, als Moderator Wasser bei einer Dichte von 0,7245 g/cm³ mit einem Borgehalt von 600 ppm.

Als Temperaturen sind für den Brennstoff 900 K, für das Cladding 620 K und für den Moderator 575 K vorgegeben. Aufgrund der in MCNP vorliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken wurde bei den Berechnungen mit MCMATH eine Temperatur von 900 K für den Brennstoff und jeweils 600 K für Cladding und Moderator verwendet, die vorgegebenen Dichten wurden jedoch beibehalten.

ENDF/B-VI, welche den Berechnungen mit MCMATH zugrundeliegen.

5.1.2 Multiplikationsfaktoren k_∞ von MOX-Brennstoffen

In Tabelle 5.2 sind die berechneten Multiplikationsfaktoren für den MOX-A Benchmark, in Tabelle 5.3 für Benchmark MOX-B zusammengefasst. Neben dem Mittelwert der Einzelergebnisse $k_\infty(av)$ wurde von den Benchmark-Veranstaltern auch eine Standardabweichung σ_{k_∞} nach

$$\sigma_{k_\infty}^2 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (k_\infty(i) - k_\infty(av))^2$$

für die $N = 9$ verschiedenen Einzelergebnisse bestimmt. Daneben sind in den Tabellen auch der jeweils geringste und größte Wert der Teilnehmer für den Multiplikationsfaktor angegeben. Diese Werte werden mit den durch MCMATH bestimmten Werten verglichen. Hierzu ist auch die relative Abweichung des MCMATH-Wertes vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer $\Delta k/k_\infty(av)$ mit $\Delta k = k_\infty(MCMATH) - k_\infty(av)$ angegeben.

	EOC 1	EOC 2	EOC 3	5 a Lagerung
$k_\infty(MCMATH)$	1,0558	1,0014	0,9518	0,9134
$k_\infty(av)$	1,05736	1,00367	0,95601	0,91526
$\Delta k/k_\infty(av)[\%]$	-0,15	-0,23	-0,44	-0,20
$\sigma_{k_\infty} [\%]$	0,44	0,53	0,71	1,02
$k_{\infty,min}$	1,04636	0,99422	0,94775	0,90233
$k_\infty(av) - \sigma_{k_\infty}$	1,05270	0,99832	0,94919	0,90588
$k_\infty(av) + \sigma_{k_\infty}$	1,06201	1,00903	0,96284	0,92463
$k_{\infty,max}$	1,06295	1,01043	0,96541	0,92808

Tabelle 5.2: Multiplikationsfaktor k_∞ für den MOX-A Benchmark (Zell-Abbrandrechnungen). Die Angaben für MCMATH basieren auf MCNP Rechnungen mit einer relativen statistischen Abweichung (ein σ) des Multiplikationsfaktors von weniger als 4×10^{-4} . Alle anderen Angaben gemäß OECD/NEA (2003b).

Bei Benchmark A steigt σ_{k_∞} von 0,44% nach dem ersten Zyklus bis auf 1,02% nach fünf Jahren Abklingzeit an. Demgegenüber beträgt die relative Abweichung der MCMATH-Werte von $k_\infty(av)$ nach dem ersten Zyklus mit -0,15% nur 35% der Standardabweichung der Benchmark-Teilnehmer σ_{k_∞} , bei EOC3 liegt das MCMATH-Ergebnis mit -0,44% bei 62% von σ_{k_∞} . Nach den fünf Jahren Abklingzeit ist die Abweichung des MCMATH-Wertes von $k_\infty(av)$ sogar wieder auf weniger als 15% von σ_{k_∞} gesunken. Damit lässt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den mit MCMATH bestimmten Werten von k_∞ und den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer feststellen.

Für Benchmark B beträgt die Standardabweichung der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer nach dem ersten Zyklus bereits 0,82%, steigt jedoch bis zum Ende der Berechnungen nur auf 1,57% an. Bei diesem Benchmark beläuft sich die Abweichung der MCMATH-Werte vom Mittelwert auf maximal 30% einer Standardabweichung (nach dem dritten Zyklus) und ist für das Ende der Berechnung mit -0,05% entsprechend weniger

	EOC 1	EOC 2	EOC 3	5 a Lagerung
$k_{\infty}(MCMATH)$	1,0865	0,9844	0,9034	0,8784
$k_{\infty}(av)$	1,08474	0,98578	0,90645	0,87882
$\Delta k/k_{\infty}(av)[\%]$	0,16	-0,14	-0,33	-0,05
$\sigma_{k_{\infty}} [\%]$	0,82	0,95	1,11	1,57
$k_{\infty,min}$	1,07057	0,96996	0,89012	0,85692
$k_{\infty}(av) - \sigma_{k_{\infty}}$	1,07582	0,97638	0,89637	0,86506
$k_{\infty}(av) + \sigma_{k_{\infty}}$	1,09365	0,99517	0,91653	0,89258
$k_{\infty,max}$	1,09625	1,00144	0,92544	0,90484

Tabelle 5.3: Multiplikationsfaktor k_{∞} für den MOX-B Benchmark (Zell-Abbrandrechnungen). Die Angaben für MCMATH basieren auf MCNP Rechnungen mit einer relativen statistischen Abweichung (ein σ) des Multiplikationsfaktors von weniger als 4×10^{-4} . Alle anderen Angaben gemäß OECD/NEA (2003b).

als vier Prozent einer Standardabweichung wiederum extrem gering. Damit ist die Übereinstimmung der MCMATH-Werte hier vergleichbar gut wie im Fall von Benchmark A.

Der mittlere Reaktivitätsverlust der MOX-Brennstoffe über einen Zyklus ($k_{\infty}(EOC_{i+1}) - k_{\infty}(EOC_i)$) bzw. während der fünf Jahre Abklingzeit beträgt für MOX-A jeweils ca. 5%, bei MOX-B ist er zu Beginn mit ca. 9% deutlich höher als während der Abklingzeit mit ca. 3,5%. Dies ist bei MOX-B darauf zurückzuführen, dass hier zu Beginn des Abbrands ein starker Aufbau des Isotops Pu-240 zu verzeichnen ist, das als Neutronenabsorber fungiert. Unterschiede im Aufbau der höheren Plutoniumisotope sind also auch für den relativ starken Unterschied der berechneten Werte für die Reaktivität nach dem ersten Zyklus verantwortlich (siehe hierzu auch den folgenden Vergleich der Isotopenzusammensetzungen). Diese Isotope sind im Fall des Benchmark A bereits annähernd im Gleichgewicht, so dass hier ein relativ gleichmäßiger Reaktivitätsverlust verzeichnet wird. Damit kann auch erklärt werden, dass im Falle des Benchmark A die Abweichungen der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer mit dem Abbrand relativ gleichmäßig zunehmen, während bei Benchmark B bereits zu Beginn des Abbrands relativ hohe Unterschiede festzustellen sind, die dann nicht in gleichem Maße mit dem Abbrand ansteigen.

5.1.3 Nuklidzusammensetzungen der MOX-Brennstoffe

Die Tabelle 5.4 gibt die Ergebnisse für die abbrandabhängigen Nuklidzusammensetzungen wieder. Dabei sind jeweils in den grau hinterlegten Zeilen die Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer $N(av)$ sowie die zweifache Standardabweichung (2σ) für die untersuchten Nuklide angegeben. In den jeweils folgenden Zeilen ist der mit MCMATH berechnete Wert für die Nuklidkonzentration N sowie die relative Abweichung $\Delta N/N(av)$ des MCMATH-Werts vom Mittelwert $N(av)$ angegeben. In der letzten Spalte ist jeweils noch zur Orientierung der Maximalwert des Verhältnisses von $\Delta N/N(av)$ zur doppelten Standardabweichung der Benchmark-Teilnehmer 2σ für die vier betrachteten Abbrandzeitpunkte

angegeben. Liegt dieser Wert unter 0,5 kann von einer extrem guten Übereinstimmung zwischen den MCMATH-Werten und den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer ausgegangen werden, liegt er zwischen 0,5 und 1,0 so ist immer noch eine sehr hohe Übereinstimmung vorhanden. Zunächst werden nun die Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer knapp dargestellt, im Anschluss werden diese mit den Ergebnisse der MCMATH-Berechnungen verglichen.

Für Benchmark A ist zunächst festzustellen, dass für die Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer bei drei majoren Aktiniden (U-234, Pu-238 und Np-237) sehr hohe Abweichungen von über 20% auftreten, während für die übrigen Nuklide die Abweichungen lediglich 5–8% betragen. Die hohen Abweichungen sind jedoch auf das Ergebnis einer einzelnen Gruppe (Department for Transport, Local Government and the Regions, Großbritannien, DTLR) zurückzuführen, deren Werte für N_i um ca. 80% unter dem Mittelwert $N(av)$ der Ergebnisse der übrigen Teilnehmer liegen. Wird dieser Wert nicht berücksichtigt ergibt sich wiederum eine gute Übereinstimmung zwischen den Benchmarkergebnissen. Für die minoren Aktiniden liegen die Abweichungen unter 30%, lediglich für Cm-242 ist nach fünf Jahren Abklingzeit die doppelte Standardabweichung größer als 60%. Bei den Spaltprodukten treten am Ende der Berechnungen große Unterschiede für die Nuklide Gd-155, Ag-109 und Rh-103 sowie für die Samarium-Isotope 149–152 auf. Dabei spielt Rh-103 eine besondere Rolle, da es alleine über 10% der gesamten Neutronenabsorption aller Spaltprodukte ausmacht. Die Samariumisotope spielen eine etwas geringere Rolle, Sm-149, Sm-151 und Sm-152 tragen ebenso wie Ag-109 mit jeweils ca. 5% zur Neutronenabsorption der Spaltprodukte bei. Sowohl für Rh-103 wie auch für Ag-109 ist die hohe Standardabweichung auf das Ergebnis einer Gruppe (Institute for Nuclear Safety, Japan, NUPEC) zurückzuführen, die um ca. 15% unter denjenigen der übrigen Teilnehmer liegt. Bleibt dieser Wert jeweils unberücksichtigt, so reduziert sich die Standardabweichung auf unter 5%. Während Gd-155 nur mit weniger als 2% zur Neutronenabsorption beiträgt, sind hier die Unterschiede zwischen den Benchmark-Teilnehmern besonders groß.⁴ Bezüglich Benchmark B sind die beobachteten Unterschiede insbesondere für Pu-238 noch deutlicher, hier liegt der DTLR-Wert 95% unter dem Mittelwert, für Np-237 ist eine Abweichung von 75% festzustellen. Hier kann auch eine gute Übereinstimmung der Benchmark-Teilnehmer festgestellt werden, wenn die DTLR-Ergebnisse nicht berücksichtigt werden. Ansonsten ergeben sich keine relevanten Unterschiede zwischen Benchmark A und B.

Im Vergleich zu den Ergebnissen der Benchmark-Teilnehmer stellen sich die Ergebnisse, welche mit MCMATH erzielt werden können, wie folgt dar. Für beide Benchmarks liegen die MCMATH-Werte der Nuklidkonzentrationen von U-234, Pu-238 und Np-237 systematisch über dem Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer, sie weisen allerdings eine geringe Abweichung im Verhältnis zur Standardabweichung der Benchmark-Teilnehmer auf. Wird der um 80% zu niedrige Wert von DTLR nicht berücksichtigt liegt der MCMATH-Wert ebenfalls in sehr guter Übereinstimmung mit den übrigen Benchmark-Teilnehmern. Die einzige signifikante Abweichung der MCMATH-Werte vom Mittelwert der Benchmark-

⁴Eine mögliche Ursache für die großen Unterschiede in den berechneten Gd-155 Konzentrationen kann in Unterschieden bzgl. des Yields verschiedener evaluierter Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken liegen. So beträgt bspw. nach Magill (1999) der Unterschied zwischen den ENDF und den JEF-Werten für den direkten Yield von Gd-155 ca. 37%, für den kumulierten Yield immer noch ca. 25%.

Teilnehmer ergibt sich für das Isotop U-236. Hier steigt die Abweichung auf 5,47% am Ende der Berechnungen an und liegt damit bei 2,2 Standardabweichungen. Ein Vergleich mit den Einzelergebnissen der Teilnehmer zeigt für dieses Nuklid eine sehr gute Übereinstimmung (weniger als 0,8% Abweichung) mit dem Ergebnis der Gruppe des Oak Ridge National Laboratory (ORNL) aus den USA. Diese Gruppe verwendete als einzige bei den Berechnungen Wirkungsquerschnitte basierend auf ENDF/B-VI. Damit lassen sich Unterschiede in der berechneten U-236-Konzentration mit hoher Sicherheit auf Differenzen in den verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückführen (siehe hierzu auch Abschnitt 4.5).

Für die Spaltprodukte ergibt sich generell eine gute Übereinstimmung der mit MCMATH berechneten Konzentrationen zu den Benchmarkergebnissen, lediglich für Gd-155 liegen die Ergebnisse von MCMATH um 55% unter dem Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer. Auch damit ist die Abweichung jedoch nur in der Größenordnung der Standardabweichung der Benchmark-Teilnehmer. Auch für das besonders relevante Nuklid Rh-103 ergibt sich beim Ende der Berechnung eine Abweichung von 5,49%. Würde jedoch das um 15% vom Durchschnitt abweichende Ergebnis von NUPEC nicht berücksichtigt, so läge der MCMATH-Wert nur noch weniger als 2% über dem Mittelwert der übrigen Benchmark-Teilnehmer. Auch hier kann daher von einer befriedigenden Übereinstimmung ausgegangen werden.

5.1.4 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die Ergebnisse für den Multiplikationsfaktor k_{∞} variieren bei EOL für Benchmark A um 1,84%, für Benchmark B um 3,90%, nach fünf Jahren Abklingzeit differieren die Ergebnisse der Teilnehmer um 2,81% bzw. 5,45%. Demgegenüber ist die Abweichung der MCMATH-Werte von $k_{\infty}(av)$ mit maximal 0,44% zufriedenstellend gering. Für die Bestimmung des abbrandabhängigen Multiplikationsfaktors mit MCMATH kann daher von einer sehr hohen Genauigkeit ausgegangen werden.

Besonders hohe Abweichungen zwischen den Ergebnissen der Benchmark-Teilnehmer für die Nuklidkonzentrationen können bei den Aktiniden für die Isotope U-234, Pu-238 sowie Np-237 festgestellt werden. Bei den Spaltprodukten weisen insbesondere Gd-155, Ag-109 und Rh-103 größere relative Abweichungen auf. Demgegenüber sind die Ergebnisse der MCMATH-Rechnungen in guter Übereinstimmung mit den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer. Diese Übereinstimmung verbessert sich noch bei Vernachlässigung von einzelnen Ausreißerergebnissen der Benchmark-Teilnehmer. Für die wesentlichen Nuklide (Uran, Plutonium, wesentliche Spaltprodukte) kann die Genauigkeit der Inventarbestimmung mit 3–5% abgeschätzt werden, bei minoren Aktiniden sowie einigen wenigen Spaltprodukten ist mit Unsicherheiten von 10–20% zu rechnen.

Tabelle 5.4: Isotopenzusammensetzungen MOX-Benchmark A/B

Nuklid	Quelle	EOC 1	2 σ	EOC 2	2 σ	EOC 3	2 σ	5 a Lagerung	2 σ	$\max(\frac{\Delta N/N(\text{av})}{2\sigma})$
			$\frac{\Delta N}{N(\text{av})}$		$\frac{\Delta N}{N(\text{av})}$		$\frac{\Delta N}{N(\text{av})}$		$\frac{\Delta N}{N(\text{av})}$	
		[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	
MOX-Benchmark A: Aktinide										
U-234	NEA	5,36030e−7	45,26	7,53230e−7	57,71	9,19180e−7	63,53	2,38530e−6	70,59	
	MCMATH	5,73066e−7	6,91	8,18901e−7	8,72	1,00629e−6	9,48	2,66113e−6	11,56	0,16
U-235	NEA	4,38960e−5	0,42	3,48100e−5	0,87	2,69920e−5	1,44	2,70510e−5	1,52	
	MCMATH	4,39358e−5	0,09	3,48684e−5	0,17	2,70541e−5	0,23	2,71286e−5	0,29	0,22
U-236	NEA	2,51600e−6	4,56	4,46660e−6	4,15	5,90330e−6	3,64	6,07330e−6	4,89	
	MCMATH	2,61365e−6	3,88	4,65922e−6	4,31	6,18722e−6	4,81	6,40571e−6	5,47	1,32
U-238	NEA	2,11570e−2	0,04	2,09170e−2	0,07	2,06650e−2	0,10	2,06650e−2	0,10	
	MCMATH	2,11582e−2	0,01	2,09164e−2	0,00	2,06623e−2	−0,01	2,06623e−2	−0,01	0,14
Pu-238	NEA	4,13500e−5	1,41	3,86100e−5	7,00	3,82010e−5	16,80	4,00040e−5	21,55	
	MCMATH	4,13957e−5	0,11	3,90121e−5	1,04	3,93003e−5	2,88	4,15766e−5	3,93	0,18
Pu-239	NEA	8,07270e−4	1,34	6,46320e−4	2,89	5,22730e−4	4,41	5,24520e−4	4,40	
	MCMATH	8,05772e−4	−0,19	6,43491e−4	−0,44	5,20214e−4	−0,48	5,22004e−4	−0,48	0,15
Pu-240	NEA	4,73670e−4	1,55	4,48380e−4	2,62	4,11710e−4	3,34	4,15130e−4	3,44	
	MCMATH	4,73878e−4	0,04	4,48283e−4	−0,02	4,11101e−4	−0,15	4,15207e−4	0,02	0,04
Pu-241	NEA	2,18990e−4	1,92	2,37470e−4	2,70	2,37190e−4	3,08	1,86480e−4	2,94	
	MCMATH	2,20309e−4	0,60	2,40425e−4	1,24	2,41066e−4	1,63	1,89353e−4	1,54	0,53
Pu-242	NEA	1,34650e−4	1,74	1,43070e−4	3,44	1,55040e−4	5,02	1,55040e−4	5,02	
	MCMATH	1,32782e−4	−1,39	1,39730e−4	−2,33	1,50193e−4	−3,13	1,50197e−4	−3,12	0,80
Np-237	NEA	1,19470e−6	80,17	2,36860e−6	74,27	3,42280e−6	69,97	3,68970e−6	71,44	
	MCMATH	1,37991e−6	15,50	2,72533e−6	15,06	3,93012e−6	14,82	4,35666e−6	18,08	0,25
Am-241	NEA	8,77820e−6	3,61	1,55870e−5	5,64	1,93120e−5	7,46	6,96790e−5	4,49	
	MCMATH	8,89586e−6	1,34	1,59237e−5	2,16	1,98777e−5	2,93	7,12169e−5	2,21	0,49
Am-242m	NEA	1,50750e−7	32,39	3,58930e−7	31,50	4,79450e−7	31,81	4,70350e−7	30,89	
	MCMATH	1,29562e−7	−14,06	3,09421e−7	−13,79	4,16070e−7	−13,22	4,06048e−7	−13,67	0,44
Am-243	NEA	1,70800e−5	8,91	2,95490e−5	7,95	3,92420e−5	7,26	3,92400e−5	7,26	
	MCMATH	1,81397e−5	6,20	3,11317e−5	5,36	4,13601e−5	5,40	4,13602e−5	5,40	0,74
Cm-242	NEA	9,26280e−7	10,00	2,47080e−6	9,23	3,79880e−6	9,01	2,99230e−9	64,54	
	MCMATH	9,34248e−7	0,86	2,51524e−6	1,80	3,89846e−6	2,62	2,72254e−9	−9,02	0,29
Cm-243	NEA	1,26520e−8	18,78	6,37200e−8	15,83	1,36960e−7	12,71	1,21590e−7	12,87	

Tabelle 5.4 Forts.

Nuklid	Quelle	EOC 1	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 2	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 3	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	5 a Lagerung	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	$\max(\frac{\Delta N/N(av)}{2\sigma})$
		[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	[10 ²⁴ at/cm ³]	[%]	
	MCMATH	1,18788e-8	-6,11	5,95177e-8	-6,59	1,27753e-7	-6,72	1,13124e-7	-6,96	0,54
Cm-244	NEA	3,61020e-6	22,05	1,20590e-5	20,00	2,30900e-5	17,46	1,90720e-5	17,49	
	MCMATH	3,93903e-6	9,11	1,29823e-5	7,66	2,47903e-5	7,36	2,04674e-5	7,32	0,42
Cm-245	NEA	1,78090e-7	27,25	1,08970e-6	24,59	2,78900e-6	25,32	2,78820e-6	25,31	
	MCMATH	1,87428e-7	5,24	1,15666e-6	6,14	2,95129e-6	5,82	2,95008e-6	5,81	0,25
MOX-Benchmark A: Spaltprodukte										
Mo-95	NEA	1,26440e-5	34,93	2,94760e-5	14,45	4,53610e-5	8,95	5,04450e-5	1,42	
	MCMATH	1,18799e-5	-6,04	2,89027e-5	-1,94	4,50429e-5	-0,70	5,10213e-5	1,14	0,80
Tc-99	NEA	2,22390e-5	4,27	4,27630e-5	4,60	6,15490e-5	4,76	6,16920e-5	4,86	
	MCMATH	2,19091e-5	-1,48	4,21529e-5	-1,43	6,06063e-5	-1,53	6,08224e-5	-1,41	0,35
Ru-101	NEA	2,24230e-5	4,80	4,39580e-5	4,77	6,45740e-5	4,80	6,45750e-5	4,80	
	MCMATH	2,29347e-5	2,28	4,49738e-5	2,31	6,61045e-5	2,37	6,61045e-5	2,37	0,49
Rh-103	NEA	2,01610e-5	9,59	3,86850e-5	8,12	5,34410e-5	8,59	5,60630e-5	11,78	
	MCMATH	2,04391e-5	1,38	4,00305e-5	3,48	5,56565e-5	4,15	5,91430e-5	5,49	0,48
Ag-109	NEA	5,40670e-6	15,76	9,66030e-6	16,22	1,30850e-5	17,99	1,30930e-5	18,07	
	MCMATH	5,29682e-6	-2,03	9,68246e-6	0,23	1,34125e-5	2,50	1,34125e-5	2,44	0,14
Cs-133	NEA	2,39740e-5	2,79	4,56140e-5	3,03	6,47280e-5	3,45	6,51210e-5	3,58	
	MCMATH	2,39563e-5	-0,07	4,58985e-5	0,62	6,54275e-5	1,08	6,59700e-5	1,30	0,36
Nd-143	NEA	1,56520e-5	4,59	3,05420e-5	3,29	4,37470e-5	3,10	4,44780e-5	1,99	
	MCMATH	1,55902e-5	-0,39	3,04626e-5	-0,26	4,36538e-5	-0,21	4,44443e-5	-0,08	0,09
Nd-145	NEA	1,14180e-5	1,85	2,19960e-5	2,62	3,17120e-5	3,55	3,17170e-5	3,55	
	MCMATH	1,15279e-5	0,96	2,22668e-5	1,23	3,22082e-5	1,56	3,22082e-5	1,55	0,52
Sm-147	NEA	8,04440e-7	2,55	2,45560e-6	2,73	4,10820e-6	3,62	1,04930e-5	5,46	
	MCMATH	8,06186e-7	0,22	2,47032e-6	0,60	4,13206e-6	0,58	1,07959e-5	2,89	0,53
Sm-149	NEA	4,07100e-7	10,74	3,89390e-7	13,16	3,55510e-7	12,99	4,08130e-7	12,81	
	MCMATH	4,02551e-7	-1,12	3,80362e-7	-2,32	3,48825e-7	-1,88	3,98903e-7	-2,26	0,18
Sm-150	NEA	4,85650e-6	5,63	1,04830e-5	8,59	1,60490e-5	10,08	1,60490e-5	10,08	
	MCMATH	4,80947e-6	-0,97	1,04045e-5	-0,75	1,60385e-5	-0,07	1,60385e-5	-0,07	0,17
Sm-151	NEA	1,43600e-6	8,84	1,72940e-6	15,11	1,80890e-6	20,20	1,74730e-6	20,22	

Tabelle 5.4 Forts.

Nuklid	Quelle	EOC 1	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 2	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 3	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	5 a Lagerung	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	$\max(\frac{\Delta N/N(av)}{2\sigma})$
		$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	
	MCMATH	1,39599e-6	-2,79	1,63448e-6	-5,49	1,66840e-6	-7,77	1,61743e-6	-7,43	0,38
Sm-152	NEA	2,94340e-6	8,39	5,39630e-6	13,61	7,01640e-6	17,56	7,01690e-6	17,57	
	MCMATH	2,88072e-6	-2,13	5,16147e-6	-4,35	6,57301e-6	-6,32	6,57391e-6	-6,31	0,36
Eu-153	NEA	2,13970e-6	8,98	5,19420e-6	9,80	8,26260e-6	9,65	8,30020e-6	9,58	
	MCMATH	2,17759e-6	1,77	5,21893e-6	0,48	8,14769e-6	-1,39	8,19529e-6	-1,26	0,20
Gd-155	NEA	1,06640e-8	79,74	1,79420e-8	77,89	2,69700e-8	71,87	5,68580e-7	85,83	
	MCMATH	5,99339e-9	-43,80	9,88369e-9	-44,91	1,64557e-8	-38,99	2,75099e-7	-51,62	0,60
MOX-Benchmark B: Aktinide										
U-234	NEA	2,22750e-7	2,69	1,86390e-7	6,69	1,69170e-7	16,78	3,80610e-7	49,04	
	MCMATH	2,22747e-7	0,00	1,86520e-7	0,07	1,71957e-7	1,65	4,14433e-7	8,89	0,18
U-235	NEA	4,19970e-5	0,78	2,91520e-5	1,32	1,86480e-5	2,56	1,86780e-5	2,62	
	MCMATH	4,21938e-5	0,47	2,93344e-5	0,63	1,87994e-5	0,81	1,88374e-5	0,85	0,60
U-236	NEA	3,08260e-6	4,85	5,39960e-6	3,55	6,89620e-6	2,99	6,96900e-6	2,50	
	MCMATH	3,14566e-6	2,05	5,56862e-6	3,13	7,14940e-6	3,67	7,24370e-6	3,94	1,58
U-238	NEA	2,20440e-2	0,05	2,17730e-2	0,09	2,14780e-2	0,10	2,14780e-2	0,10	
	MCMATH	2,20462e-2	0,01	2,17748e-2	0,01	2,14747e-2	-0,02	2,14747e-2	-0,02	0,20
Pu-238	NEA	6,31830e-7	31,70	1,77540e-6	63,51	4,14290e-6	71,50	5,47620e-6	72,36	
	MCMATH	6,56573e-7	3,92	1,95278e-6	9,99	4,68789e-6	13,15	6,24543e-6	14,05	0,19
Pu-239	NEA	5,72180e-4	2,47	3,78390e-4	4,90	2,64600e-4	6,84	2,66790e-4	6,80	
	MCMATH	5,68059e-4	-0,72	3,73896e-4	-1,19	2,61731e-4	-1,08	2,63935e-4	-1,07	0,29
Pu-240	NEA	1,44460e-4	12,30	1,80300e-4	7,02	1,77630e-4	4,69	1,78270e-4	4,60	
	MCMATH	1,47216e-4	1,91	1,81006e-4	0,39	1,77885e-4	0,14	1,78678e-4	0,23	0,16
Pu-241	NEA	6,19380e-5	20,89	9,75770e-5	4,41	1,06310e-4	3,61	8,35790e-5	3,80	
	MCMATH	6,05250e-5	-2,28	9,92337e-5	1,70	1,08178e-4	1,76	8,49709e-5	1,67	0,49
Pu-242	NEA	5,82750e-6	20,24	2,07660e-5	12,80	4,12930e-5	7,40	4,12950e-5	7,41	
	MCMATH	5,55722e-6	-4,64	2,01402e-5	-3,01	4,03122e-5	-2,38	4,03141e-5	-2,38	0,32
Np-237	NEA	1,17250e-6	78,98	2,34150e-6	71,35	3,35110e-6	66,01	3,48120e-6	66,30	
	MCMATH	1,30443e-6	11,25	2,63925e-6	12,72	3,75386e-6	12,02	3,95418e-6	13,59	0,20
Am-241	NEA	1,41710e-6	16,43	3,88610e-6	11,14	5,27550e-6	7,87	2,78680e-5	3,39	

Tabelle 5.4 Forts.

Nuklid	Quelle	EOC 1	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 2	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 3	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	5 a Lagerung	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	$\max(\frac{\Delta N/N(av)}{2\sigma})$
		$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	
	MCMATH	1,40418e-6	-0,91	3,93840e-6	1,35	5,42361e-6	2,81	2,84896e-5	2,23	0,66
Am-242m	NEA	2,19520e-8	50,25	7,66980e-8	46,52	1,07330e-7	41,42	1,05280e-7	40,48	
	MCMATH	1,83444e-8	-16,43	6,56130e-8	-14,45	9,38017e-8	-12,60	9,15467e-8	-13,04	0,33
Am-243	NEA	6,98940e-7	33,66	3,99810e-6	24,32	1,01850e-5	17,19	1,01870e-5	17,18	
	MCMATH	7,47642e-7	6,97	4,27315e-6	6,88	1,08727e-5	6,75	1,08780e-5	6,78	0,39
Cm-242	NEA	1,74020e-7	16,04	8,72300e-7	11,47	1,72350e-6	7,79	1,03980e-9	39,35	
	MCMATH	1,71359e-7	-1,53	8,82056e-7	1,12	1,77888e-6	3,21	1,00344e-9	-3,50	0,41
Cm-243	NEA	1,94400e-9	33,58	1,91960e-8	26,72	5,52370e-8	18,34	4,90420e-8	18,32	
	MCMATH	1,74896e-9	-10,03	1,77154e-8	-7,71	5,09613e-8	-7,74	4,51260e-8	-7,98	0,44
Cm-244	NEA	1,13310e-7	42,49	1,19160e-6	32,13	4,68250e-6	23,35	3,86850e-6	23,49	
	MCMATH	1,22079e-7	7,74	1,30791e-6	9,76	5,08631e-6	8,62	4,19971e-6	8,56	0,37
Cm-245	NEA	4,22580e-9	36,19	7,54320e-8	28,48	3,93780e-7	23,16	3,93650e-7	23,14	
	MCMATH	4,43958e-9	5,06	8,33705e-8	10,52	4,44656e-7	12,92	4,44476e-7	12,91	0,56
MOX-Benchmark B: Spaltprodukte										
Mo-95	NEA	1,30580e-5	34,76	3,02250e-5	14,24	4,60550e-5	8,72	5,12040e-5	1,31	
	MCMATH	1,22470e-5	-6,21	2,95680e-5	-2,17	4,56213e-5	-0,94	5,16704e-5	0,91	0,70
Tc-99	NEA	2,22970e-5	3,32	4,25700e-5	3,59	6,05930e-5	3,87	6,07380e-5	4,00	
	MCMATH	2,20602e-5	-1,06	4,20315e-5	-1,26	5,97039e-5	-1,47	5,99211e-5	-1,34	0,38
Ru-101	NEA	2,24210e-5	4,70	4,38730e-5	4,49	6,42370e-5	4,36	6,42380e-5	4,36	
	MCMATH	2,29275e-5	2,26	4,48520e-5	2,23	6,56864e-5	2,26	6,56864e-5	2,25	0,52
Rh-103	NEA	1,92250e-5	10,93	3,49900e-5	9,27	4,54710e-5	9,42	4,80770e-5	13,39	
	MCMATH	1,93495e-5	0,65	3,58229e-5	2,38	4,68989e-5	3,14	5,03641e-5	4,76	0,36
Ag-109	NEA	4,80650e-6	28,63	8,53210e-6	26,09	1,14210e-5	24,77	1,14290e-5	24,85	
	MCMATH	4,59130e-6	-4,48	8,37503e-6	-1,84	1,15360e-5	1,01	1,15360e-5	0,94	0,16
Cs-133	NEA	2,40050e-5	2,90	4,52090e-5	3,35	6,31820e-5	3,99	6,35740e-5	4,14	
	MCMATH	2,39958e-5	-0,04	4,54445e-5	0,52	6,38105e-5	0,99	6,43535e-5	1,23	0,30
Nd-143	NEA	1,53480e-5	4,97	2,88950e-5	3,54	3,92630e-5	3,11	3,99940e-5	1,79	
	MCMATH	1,53300e-5	-0,12	2,88711e-5	-0,08	3,92259e-5	-0,09	4,00173e-5	0,06	0,03
Nd-145	NEA	1,13020e-5	1,93	2,16300e-5	2,29	3,08520e-5	3,18	3,08570e-5	3,19	

Tabelle 5.4 Forts.

Nuklid	Quelle	EOC 1	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 2	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	EOC 3	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	5 a Lagerung	2σ $\frac{\Delta N}{N(av)}$	$\max(\frac{\Delta N/N(av)}{2\sigma})$
		$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	$[10^{24} \text{ at/cm}^3]$	$[\%]$	
	MCMATH	1,14374e-5	1,20	2,19156e-5	1,32	3,13257e-5	1,54	3,13257e-5	1,52	0,62
Sm-147	NEA	7,70910e-7	2,09	2,27480e-6	2,25	3,63230e-6	3,49	9,34200e-6	5,79	
	MCMATH	7,77060e-7	0,80	2,29934e-6	1,08	3,65655e-6	0,67	9,59652e-6	2,72	0,48
Sm-149	NEA	2,12120e-7	11,09	1,85660e-7	11,94	1,57540e-7	11,28	2,15290e-7	11,13	
	MCMATH	2,09915e-7	-1,04	1,82874e-7	-1,50	1,55731e-7	-1,15	2,10883e-7	-2,05	0,18
Sm-150	NEA	5,02040e-6	6,57	1,07740e-5	8,36	1,64250e-5	9,67	1,64250e-5	9,67	
	MCMATH	4,96689e-6	-1,07	1,06988e-5	-0,70	1,64457e-5	0,13	1,64457e-5	0,13	0,16
Sm-151	NEA	9,35720e-7	9,62	9,58830e-7	17,76	9,45730e-7	21,07	9,17220e-7	21,44	
	MCMATH	9,16090e-7	-2,10	9,01255e-7	-6,00	8,70892e-7	-7,91	8,49966e-7	-7,33	0,38
Sm-152	NEA	3,09350e-6	8,94	5,27190e-6	14,51	6,47430e-6	19,23	6,47450e-6	19,23	
	MCMATH	3,00557e-6	-2,84	4,98912e-6	-5,36	5,98373e-6	-7,58	5,98394e-6	-7,58	0,39
Eu-153	NEA	2,17960e-6	10,65	5,32640e-6	10,42	8,22280e-6	9,84	8,26580e-6	9,91	
	MCMATH	2,21532e-6	1,64	5,30372e-6	-0,43	7,99451e-6	-2,78	8,04809e-6	-2,63	0,28
Gd-155	NEA	4,26580e-9	85,98	6,92820e-9	73,59	9,77890e-9	67,17	4,70810e-7	89,50	
	MCMATH	2,27207e-9	-46,74	4,37381e-9	-36,87	6,93656e-9	-29,07	2,54621e-7	-45,92	0,54

Tabelle 5.4: Isotopenzusammensetzung des OECD/NEA MOX-Benchmark MOX-A und MOX-B für Zell-Abbrandrechnungen. Angaben für OECD gemäß OECD/NEA (2003b).

5.2 OECD/NEA-Benchmark: Moderatordichte-Koeffizienten für MOX

Die Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten setzt eine sehr genaue Berechnung der Reaktivität eines Brennstoffs zu einem gegebenen Abbrandzeitpunkt voraus. Hier können insbesondere Unterschiede zwischen den zugrunde liegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken ausschlaggebend für signifikante Differenzen in den Multiplikationsfaktoren und den daraus abzuleitenden Reaktivitätskoeffizienten sein.

Zur Überprüfung der Genauigkeit der mit MCNP im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Reaktivitätskoeffizienten wird hier ein Benchmark der OECD zur Bestimmung des Einflusses der Moderatordichte (Void-Koeffizient) bei MOX-Brennstoffen herangezogen (OECD/NEA, 1995b).

5.2.1 Spezifikationen des Benchmarks

Im Rahmen des OECD/NEA Void-Benchmarks wird die Änderung des Multiplikationsfaktors bei einer Änderung der Moderatordichte für vier verschiedene Brennstoff-Kombinationen untersucht. Zugrunde liegt eine Makrozelle mit 30×30 typischen LWR-Brennstoffzellen aufgebaut aus Brennstoff, Cladding und Moderator.⁵ Eine zentrale Region von 10×10 Brennstoffzellen wird entweder mit UO_2 einer Anreicherung von 3,35% U-235 oder mit MOX-Brennstoff auf der Basis von drei verschiedenen Plutonium-Konzentrationen (H-MOX: 14,4% Pu_{tot} ; M-MOX: 9,7% Pu_{tot} ; L-MOX: 5,4% Pu_{tot} , siehe Tabelle 5.5) belegt.

	UO_2	H-MOX	M-MOX	L-MOX
U-235	7,64e-4	7,90e-5	6,34e-5	5,67e-5
U-238	2,21e-2	1,92e-2	2,03e-2	2,14e-2
Pu-238		4,09e-5	2,95e-5	1,39e-5
Pu-239		1,99e-3	1,34e-3	7,76e-4
Pu-240		7,53e-4	5,26e-4	2,89e-4
Pu-241		2,06e-4	1,35e-4	6,61e-5
Pu-242		1,40e-4	1,03e-4	5,07e-5
Am-241		9,83e-5	6,65e-5	3,56e-5
O-16	4,57e-2	4,50e-2	4,51e-2	4,54e-2

Tabelle 5.5: Die verschiedenen Brennstoffzusammensetzungen gemäß OECD/NEA (1995b). Angaben als Atomdichte [10^{-24} at/cm³].

⁵Eine Makrozelle aus verschiedenen Brennstoffbereichen kann für Reaktivitätsberechnungen in MCNP modelliert werden, obwohl die Untersuchung eines zellabhängigen Abbrands zur Zeit noch nicht in MC-MATH implementiert ist.

Die äußeren Brennstoffzellen innerhalb der Makrozelle sind einheitlich mit UO_2 derselben Anreicherung belegt. Die Makrozelle selbst hat periodische Randbedingungen, d. h. sie baut ein unendliches Gitter auf. Für die einzelne Brennstoffzelle wird folgende Geometrie zugrundegelegt (siehe auch Abbildung 5.1):

- Radius des Brennstoffpellets: 0,4095 cm,
- Außenradius des Claddings: 0,4750 cm,
- Brennstabgitter: 1,26 cm.

Als Brennstoff- und Moderatortemperatur sind 20°C vorgegeben. Aufgrund der in MCNP vorliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken (siehe Anhang F) wurde bei den MCMATH-Rechnungen eine Temperatur von 300 K angenommen.

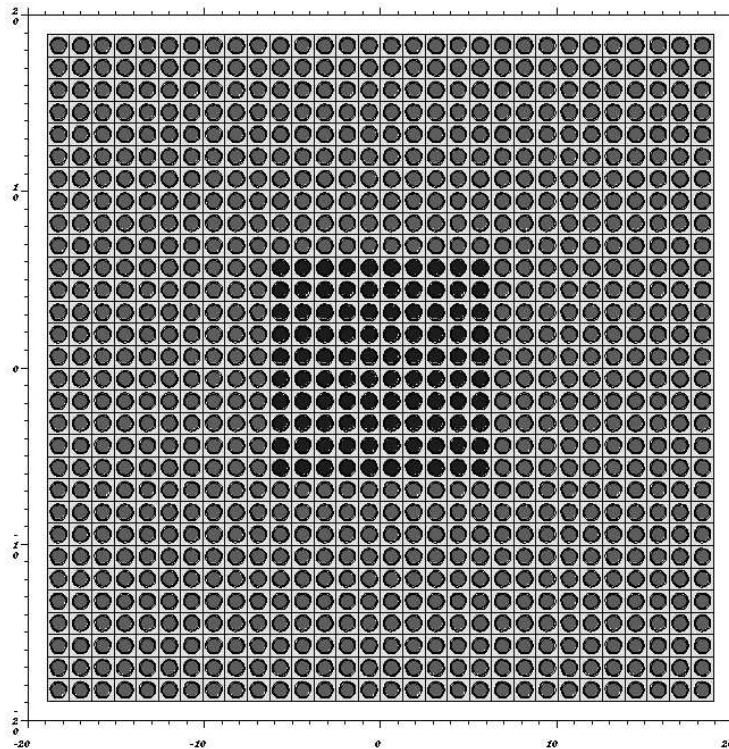


Abbildung 5.1: Aufbau der 30×30 Makrozelle. Der zentrale Bereich von 10×10 Einheitszellen ist mit MOX-Brennstoff (dunkler), der Rand grundsätzlich mit UO_2 belegt. Im moderierten Fall sind alle Brennstoffzellen mit Moderator gefüllt, andernfalls ist der zentrale Bereich vollständig vom Moderator geleert, der Randbereich jedoch weiterhin vollständig moderiert.

Für das Cladding wird eine Mischung aus Zr und Fe angesetzt (siehe Tabelle 5.6), als Moderator Wasser, wobei eine Beimischung von Aluminium für die Erfassung von Strukturmaterialien etc. ergänzt wird.

	Cladding	Moderator
Zr	3,68e−2	
Fe	7,23e−5	
O		2,47e−2
H		4,94e−2
Al		3,31e−3

Tabelle 5.6: Atomdichte [10^{-24} cm^3] des Claddings und des Moderators gemäß OECD/NEA (1995b).

Untersucht werden die vier Brennstoff-Kombinationen mit UO_2 , H-MOX, M-MOX oder L-MOX im Zentrum und jeweils mit UO_2 im Randbereich. Bestimmt wird der Multiplikationsfaktor einmal bei normaler Moderatordichte und für den Fall ohne Moderator in der zentralen Region von (10×10) -Brennstoffzellen. Neben der Reaktivität der vollständigen Makrozelle werden außerdem die Multiplikationsfaktoren für die einfachen Brennstoffzellen, d. h. eine homogene unendliche Anordnung der Brennstoffe (UO_2 , H-MOX, M-MOX oder L-MOX) mit und ohne Moderator berechnet (Zellrechnungen).

5.2.2 Vergleich der Ergebnisse

Im Rahmen des Benchmarks wurden 18 Ergebnisse von 12 Institutionen aus acht verschiedenen Ländern bereitgestellt. Verwendet wurden dabei Wirkungsquerschnittsdaten aus ENDF/B (Version IV und V), JEF (Version 1.0 und 2.2), JENDL (Version 2 und 3.1) und weitere spezielle Datensätze (für genaue Angaben siehe OECD/NEA (1995b, S. 11 ff)). Zum Vergleich mit diesen Angaben wurden die verschiedenen diskutierten Brennstoff-Anordnungen im Rahmen dieser Arbeit mit MCNP berechnet. Als Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken wurde für alle Nuklide außer Fe_{nat} die E6-Bibliothek (Gil, 2001) basierend auf ENDF/B-VI bei 300 K verwendet. Für die in Gil (2001) nicht vorliegenden Fe_{nat} -Querschnitte wurde die Standard-Bibliothek der MCNP Distribution verwendet, die auf einer Evaluation des Los Alamos National Laboratory bei 293,5 K beruht (Briesmeister, 2000). Dabei wurden insgesamt 20 Mio. Neutronen in Generationen von jeweils 10.000 Neutronen verfolgt, um eine statistische Genauigkeit des Multiplikationsfaktors von besser als 3×10^{-4} (2σ) zu erreichen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.7 zusammengefasst. Neben dem Mittelwert $k_{\infty}(av)$ ist jeweils auch die relative Abweichung der niedrigsten und höchsten Werte der Benchmark-Teilnehmer angegeben. Zusätzlich zu den Multiplikationsfaktoren ist schließlich auch die Änderung $\Delta k_{\infty} = k_{\infty}(\text{Unmoderiert}) - k_{\infty}(\text{Modertiert})$ beim Übergang vom voll moderierten zum unmoderierten System angegeben. Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer erfolgt in OECD/NEA (1995b). An dieser Stelle werden nur einige wesentliche Aspekte der Ergebnisse dieses Benchmarks in Hinblick auf einen Vergleich mit den mittels MCNP bestimmten Werten wiedergegeben.

Im Fall der Zellrechnungen ist festzuhalten, dass für die moderierten Systeme wie zu erwar-

ten das anfängliche k_∞ für UO_2 -Brennstoff deutlich über demjenigen der MOX-Brennstoffe liegt. Dies ist auf die hohe thermische Absorption der ungeradzahligen Plutoniumisotope zurückzuführen. Mit zunehmender Anfangskonzentration des Plutoniums steigt die Anfangsreaktivität der MOX-Brennstoffe und gleicht sich dem Wert von k_∞ bei UO_2 an. Die Differenzen zwischen den Ergebnissen der Benchmark-Teilnehmer sind für den Uran-Fall mit etwa 0,5% um über einen Faktor zwei geringer als im Fall der MOX-Brennstoffe mit im Mittel ca. 1–2% Abweichung. Ein großer Teil dieser Unterschiede ist auf die zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückzuführen. Dies lässt sich daran erkennen, dass die Ergebnisse von Teilnehmern auf der Basis gleicher Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken untereinander deutlich weniger voneinander abweichen, als diejenigen von Teilnehmern, deren Rechnungen auf verschiedenen Bibliotheken beruhen.

Für die unmoderierten Zellrechnungen kann festgehalten werden, dass für den Uran-Brennstoff die Reaktivität sehr stark abnimmt, was einem stark negativen Void-Koeffizienten entspricht. Für die verschiedenen MOX-Brennstoffe ist die Abnahme der Reaktivität vom moderierten zum unmoderierten Fall nicht so ausgeprägt wie beim Uran-Brennstoff. Im Falle des hohen Plutoniumgehalts ergibt sich im vollständig unmoderierten Fall sogar eine Reaktivitätszunahme, d. h. ein positiver Moderatorichte-Koeffizient. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass sich das System bei einer Plutoniumkonzentration von über 14% eher wie ein schnelles System verhält, bei dem alle Plutoniumisotope zur Spaltung beitragen. Im unmoderierten Fall sind die Abweichungen der Einzelergebnisse für UO_2 - und MOX-Brennstoff etwa gleich groß und liegen zwischen 1–3,5%. Die in diesem Fall erhöhten Unsicherheiten lassen sich neben Problemen der Näherungen bei bestimmten Neutronentransport-Programmen auch auf den größeren Einfluss der hochenergetischen Wirkungsquerschnitte im unmoderierten System zurückführen. Hier spielt eine angemessene Berücksichtigung der Resonanzen eine ausschlaggebende Rolle für die Qualität der erzielten Ergebnisse.

Für die Multiplikationsfaktoren ist im Fall der Makrozellrechnungen zunächst festzuhalten, dass sowohl im moderierten wie im unmoderierten Fall die von den verschiedenen Benchmark-Gruppen bestimmten Werte für Uran-Brennstoff um weniger als ein Prozent voneinander abweichen. Für die verschiedenen MOX-Brennstoffe liegen die Unterschiede bei 1–2%, wobei die Größe der Ungenauigkeit nicht wesentlich von der Pu-Konzentration (L-MOX, M-MOX, H-MOX) abhängt. Bei allen Brennstoff-Kombinationen ergeben sich für die Änderung der Reaktivität beim Übergang vom moderierten zum teilmoderierten System Δk_∞ nur sehr geringe Absolutwerte, da die Reaktivität insgesamt wesentlich durch den moderierten UO_2 -Bereich festgelegt ist. Die sich ergebenden sehr hohen relativen Fehler entsprechen dabei etwa vergleichbaren absoluten Unsicherheiten in Δk_∞ wie im Fall der einfachen Zellrechnung. Auch im Fall der Makrozellrechnungen nimmt Δk_∞ mit zunehmendem Pu-Gehalt zu, hier ergibt sich jedoch bereits im Fall der geringen Pu-Konzentration bei L-MOX im Mittel der verschiedenen Ergebnisse ein, wenn auch sehr schwacher, Anstieg der Reaktivität. Im Fall der hohen Pu-Konzentration bei H-MOX zeigen alle Ergebnisse ein positives Δk_∞ .

Für die Ergebnisse der MCNP Rechnungen kann zunächst eine allgemein sehr gute Übereinstimmung mit den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer festgestellt werden ($<0,5\%$

Abweichung, siehe Tabelle 5.7). Lediglich im Falle der unmoderierten Brennstoffzellen mit MOX-Brennstoff treten systematisch höhere Abweichungen auf, die mit zunehmender Plutoniumkonzentration von 1,2% bis 1,64% reichen. Auch für die resultierenden Unterschiede der Reaktivitäten im moderierten und unmoderierten Fall liegen die mit MCNP bestimmten Ergebnisse immer deutlich in der Bandbreite der von den anderen Benchmark-Teilnehmern berechneten Werte. Der einzige Fall einer Abweichung, die außerhalb des von den Benchmark-Teilnehmern aufgespannten Intervalls liegt, ist für die einfache Zellrechnung im Fall von H-MOX zu verzeichnen. Hier ergibt sich ein höherer positiver Void-Effekt als bei den Ergebnissen der anderen Gruppen. Dieser ist auf den deutlich höheren Wert der Reaktivität der Brennstoffzelle im unmoderierten Fall zurückzuführen. Es ergibt sich bei der MCNP Rechnung eine mit 1,64% deutlich größere Abweichung vom Mittelwert als bei den übrigen Benchmark-Teilnehmern.

Um zu verifizieren, ob diese Unterschiede wesentlich auf Effekte der Modellierung (Monte-Carlo Verfahren) oder der zugrunde liegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückzuführen sind, wurde für die Zellrechnungen eine Vergleichsrechnung mit Wirkungsquerschnitten aus der MCNP Standard-Bibliothek RMCCS basierend auf ENDF/B-V (siehe Briesmeister (2000) und Anhang F) durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.8 zusammengefasst.

Zunächst kann festgestellt werden, dass die mit ENDF/B-V berechneten Reaktivitäten systematisch im moderierten Fall um 0,3–0,5%, im unmoderierten Fall sogar um 1,9–3,0% unter den mit ENDF/B-VI bestimmten Werten liegen. Damit fallen die Ergebnisse der ENDF/B-V Rechnungen immer in das von den anderen Benchmark-Teilnehmern aufgespannte Intervall. Für die Werte von Δk_∞ liegen ebenfalls alle mit ENDF/B-V berechneten Werte klar innerhalb des von den übrigen Teilnehmern definierten Intervalls. Insbesondere im Fall der hohen Pu-Konzentration liegt der Wert von Δk_∞ für ENDF/B-V um 3,6% unter dem Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer, während der mit ENDF/B-VI bestimmte Wert um 34,6% über diesem Mittelwert lag. Bereits Unterschiede in den verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken können also für den extremen Fall des vollständigen Verlusts des Moderators bei hohen Plutonium-Konzentrationen zu einer Abweichung bis zu 40% in den berechneten Reaktivitätsdifferenzen führen.

5.2.3 Zusammenfassung

Insgesamt wird von den Benchmark-Veranstaltern festgestellt, dass die Ungenauigkeiten bei der Berechnung der Reaktivitäten in der Größenordnung von über einem Prozent noch nicht als akzeptabel angesehen werden können. Aufgrund der Ähnlichkeit von Ergebnissen, welche auf denselben Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken beruhen, ziehen die Veranstalter den Schluss, dass insbesondere die Differenzen zwischen den verschiedenen Bibliotheken im Lichte dieses Benchmark genauer untersucht und ausgeglichen werden müssen.

Hinsichtlich der mit MCMATH erzielten Ergebnisse bleibt festzuhalten, dass die berechneten Reaktivitäten mit den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer in praktisch allen Fällen eine sehr hohe Übereinstimmung aufweisen. Lediglich für den extremen Fall der un-

moderierten MOX-Zellrechnungen traten Abweichungen über 0,5% auf. Die systematisch höheren Werte der MCMATH-Berechnungen im Vergleich zum Benchmark-Mittelwert kann hier auf die Verwendung der ENDF/B-VI-Daten zurückgeführt werden, die im unmoderierten Fall zu höheren Reaktivitäten führen, wie eine Vergleichsrechnung auf der Basis von ENDF/B-V Querschnitten zeigen konnte.

Es bleibt festzuhalten, dass bereits die auf verschiedene Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückführbaren Unterschiede zu einem systematischen Fehler bei der Bestimmung von Void-Koeffizienten in der Größenordnung von 40% führen kann, auch wenn der Fall eines totalen Moderatorverlusts bei hoher Plutoniumkonzentration im unendlichen Gitter ein unrealistisches Szenario wiedergibt. Auch im Fall der Makrozellrechnungen liegen die typischen absoluten Unterschiede für die berechneten Reaktivitätsdifferenzen Δk_{∞} der Benchmark-Teilnehmer bei ca. 0,004. Da bei den Makrozellrechnungen ein Neuntel des Gitters vollständig unmoderiert war, entspricht dies einer mittleren Änderung der Moderatordichte von 11,1%. Daraus leitet sich auch im Fall der Makrozellrechnungen eine systematische Ungenauigkeit bis zu ca. 40 pcm/% für die resultierenden Moderatordichte-Koeffizienten ab. Demgegenüber zeigen die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten MCNP-Ergebnisse lediglich eine mittlere Abweichung von 0,001 zu den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer. Auch wenn davon ausgegangen wird, dass die systematischen Fehler der Monte-Carlo Methode im Vergleich zu den Unsicherheiten bei den verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken vernachlässigbar wären, so ist daher auch bei Verwendung der neuesten evaluierten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken ENDF/B-VI auch in MCMATH ein systematischer Fehler bei der Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten in der Größenordnung von 10 pcm/% anzunehmen.

Einfache Brennstoffzelle						
Brennstoff	k_{∞} (Modiert)		k_{∞} (Unmodiert)		k_{∞} (Unmod.)– k_{∞} (Mod.)	
	k_{∞} (MCMATH)	$k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)	k_{∞} (MCMATH)	$k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)	Δk_{∞} (MCMATH)	$\Delta k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)
UO ₂	1,3642 –0,10%	1,3656 (–0,54%–0,66%)	0,6309 0,43%	0,6282 (–1,13%–3,47%)	–0,7333 –0,53%	–0,7372 (–1,71%–2,01%)
L-MOX	1,1472 –0,34%	1,1511 (–1,04%–2,81%)	0,7710 1,2%	0,7618 (–3,14%–1,94%)	–0,3762 –3,36%	–0,3893 (–4,7%–14,5%)
M-MOX	1,1718 –0,13%	1,1733 (–0,94%–1,87%)	1,0472 1,43%	1,0324 (–2,64%–1,46%)	–0,1246 –11,5%	–0,1409 (–12,5%–34,9%)
H-MOX	1,2172 0,07%	1,2163 (–0,90%–0,76%)	1,2958 1,64%	1,2748 (–2,23%–1,03%)	0,0786 34,6%	0,0584 (–64,0%–31,5%)
30×30 Makrozelle						
Brennstoff	k_{∞} (Modiert)		k_{∞} (Unmodiert)		k_{∞} (Unmod.)– k_{∞} (Mod.)	
	k_{∞} (MCMATH)	$k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)	k_{∞} (MCMATH)	$k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)	Δk_{∞} (MCMATH)	$\Delta k_{\infty}(av)$ (Min.–Max.)
UO ₂	1,3642 –0,14%	1,3661 (–0,61%–0,82%)	1,3497 –0,11%	1,3512 (–0,58%–0,78%)	–0,0145 –3,09%	–0,0149 (–7,38%–10,1%)
L-MOX	1,3376 –0,08%	1,3387 (–1,41%–1,13%)	1,3388 –0,01%	1,3389 (–1,75%–0,88%)	0,0012 293,0%	0,0003 (–1530%–767%)
M-MOX	1,3386 –0,07%	1,3396 (–1,46%–1,05%)	1,3425 0,001%	1,3425 (–1,71%–1,18%)	0,0039 33,8%	0,0029 (–117%–96,6%)
H-MOX	1,3427 –0,02%	1,3430 (–1,50%–0,98%)	1,3477 0,05%	1,3470 (–1,65%–0,66%)	0,0050 23,0%	0,0040 (–90,0%–67,5%))

Tabelle 5.7: Multiplikationsfaktor k_{∞} für die 30×30 Makrozelle sowie für die einfache Brennstoffzelle im unendlichen Gitter. Angaben für MCMATH basieren auf MCNP Rechnungen mit einer statistischen Genauigkeit von 3×10^{-4} , die prozentualen Fehler beziehen sich auf die jeweilige Abweichung des MCMATH-Wertes vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer. Angaben für $k_{\infty}(av)$ und Minimal-/Maximalwerte gemäß OECD/NEA (1995b).

Einfache Brennstoffzelle							
	k_{∞} (Modiert)			k_{∞} (Unmodiert)		k_{∞} (Unmod.)– k_{∞} (Mod.)	
	k_{∞}	(Min.–Max.)		k_{∞}	(Min.–Max.)	Δk_{∞}	(Min.–Max.)
L-MOX							
OECD/NEA: $k_{\infty}(av)$	1,1511	(–1,04%–2,81%)		0,7618	(–3,14%–1,94%)	–0,3893	(–4,7%–14,5%)
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-VI)	1,1472	–0,34%		0,7710	1,20%	–0,3762	–3,36%
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-V)	1,1437	–0,64%		0,7482	–1,79%	–0,3955	1,60%
M-MOX							
OECD/NEA: $k_{\infty}(av)$	1,1733	(–0,94%–1,87%)		1,0324	(–2,64%–1,46%)	–0,1409	(–12,5%–34,9%)
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-VI)	1,1718	–0,13%		1,0472	1,43%	–0,1246	–11,5%
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-V)	1,1670	–0,54%		1,0223	–0,98%	–0,1447	2,67%
H-MOX							
OECD/NEA: $k_{\infty}(av)$	1,2163	(–0,90%–0,76%)		1,2748	(–2,23%–1,03%)	0,0584	(–64,0%–31,5%)
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-VI)	1,2172	0,07%		1,2958	1,64%	0,0786	34,6%
MCMATH: k_{∞} (ENDF/B-V)	1,2109	–0,44%		1,2714	–0,27%	0,0605	–3,60%

Tabelle 5.8: Multiplikationsfaktor k_{∞} für die einfache Brennstoffzelle im unendlichen Gitter. Angaben für ENDF/B-V und ENDF/B-VI basieren auf MCMATH Rechnungen auf der Basis der entsprechenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken mit einer statistischen Genauigkeit von 3×10^{-4} , die prozentualen Fehler beziehen sich auf die jeweilige Abweichung des MCMATH-Wertes vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer. Angaben für $k_{\infty}(av)$ gemäß OECD/NEA (1995b).

5.3 IMF-Benchmark: Uranfreie Brennstoffe

Die für eine Reduktion von Plutonium-Beständen diskutierten uranfreien Brennstoffe mit inerter Matrix (IMF) stellen besondere Anforderungen an die Berechnung der Brennstoff-Zusammensetzung aus neutronenphysikalischer Sicht. Dies ist zum einen dem hohen Plutonium-Anfangsgehalt geschuldet, wie er jedoch auch in typischen MOX-Brennstoffen vorkommen kann. Daneben ist jedoch aufgrund des Fehlens des Urans im anfänglichen Brennstoff die ausgleichende Wirkung des U-238 reduziert, die sich sowohl in Bezug auf die Änderung der Reaktivität während des Abbrands (geringerer Reaktivitätsverlust aufgrund des neu erbrüteten Plutoniums), als auch in Bezug auf die starke Resonanzabsorption und ihrer Auswirkungen auf die Reaktivitätskoeffizienten bemerkbar macht. Auch führt der Einsatz einer inerten Matrix und ggf. die Verwendung von brennbaren Neutronengiften zur Anwesenheit von Materialien in Konzentrationen, die ansonsten so nicht auftreten.

Darum stellen IMF nochmals besondere Anforderungen an Rechensysteme zur Bestimmung abbrandabhängiger Eigenschaften solcher Brennstoffe. Aus diesem Grund wurde ein internationaler Benchmark für IMF zum Vergleich verschiedener Programmsysteme durchgeführt (Paratte et al., 1997, 2000, 2001). Die im Rahmen dieses Benchmark bestimmten Ergebnisse werden im Folgenden mit Ergebnissen aus MCMATH verglichen.

5.3.1 Zielsetzung und Teilnehmer

Ziel des IMF-Benchmark ist es, die Ergebnisse verschiedener Programmsysteme für abbrandabhängige Eigenschaften vordefinierter uranfreier Brennstoffe und den Einfluss der zugrundeliegenden nuklearen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken auf die Berechnungen zu untersuchen (Paratte et al., 1997, 2000). Für die Auswertung dieses Benchmarks standen Ergebnisse von fünf Institutionen zur Verfügung (CEA, ECN, JAERI, PSI und POLIMI, siehe Paratte et al. (2000, S. 161)), welche die durchzuführenden Rechnungen mit verschiedenen Programmsystemen absolvierten. Dabei lagen von POLIMI nicht alle Ergebnisse vor, da bestimmte Wirkungsquerschnitte in den dort verwendeten Bibliotheken (WIMS-86) nicht enthalten waren. Die von den verschiedenen Gruppen verwendeten grundlegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken umfassten JEF (Version 1, PSI, und Version 2.2, CEA und ECN), JENDL (Version 3.2, JAERI) und WIMS-86 (POLIMI).

5.3.2 Benchmark Spezifikationen

Im Rahmen des internationalen IMF-Benchmark sollten Zell-Abbrandrechnungen für verschiedene vorgegebene Brennstoff-Zusammensetzungen durchgeführt werden. Dazu wurde eine Standard-Zellgeometrie definiert, die den heute üblichen Werten für eine LWR-Geometrie entspricht (siehe Tabelle 5.9).

Es ist für alle Referenzbrennstoffe eine Moderatorichte von $0,7122 \text{ g/cm}^3$ vorgegeben. Bei der Berechnung des Abbrands wird eine Zugabe von Bor zum Kühlmittel im Rahmen dieses Benchmark nicht berücksichtigt. Die Brennstoffe basieren auf zwei verschiede-

	Material	Durchmesser [mm]	Temperatur [°C]	Dichte [g/cm ³]
Brennstoff	Siehe Tab. 5.11	8,2	600	Siehe Tab. 5.11
Cladding	Zr	9,5	350	6,5
Kühlmittel	H ₂ O	14,765	300	0,7122

Tabelle 5.9: Geometrie, Materialien und Dichten für den IMF-Benchmark gemäß Paratte et al. (2000). Der Zylinderradius der Zelle von 14,765 mm entspricht einer quadratischen Zelle von 13,085 mm Kantenlänge. Da in der MCNP-Modellierung in MCMATH eine quadratische Einheitszelle verwendet werden kann, wurde bei MCMATH dieser Wert für die Größe der Zelle verwendet.

nen Pu-Isotopenzusammensetzungen, einmal typisches Reaktorplutonium, des weiteren einer Zusammensetzung, die etwa dem üblichen Waffenplutonium entspricht (siehe Tabelle 5.10). In diesem Abschnitt beziehen sich die Abkürzung RG und WG daher auf die in Tabelle 5.10 definierten Plutonium-Zusammensetzungen, die sich geringfügig von den ansonsten im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Festlegungen für RPu und WPu unterscheiden (vergleiche Tabelle 2.1).

	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	
RG	58	24	13	5	%
WG	93	6	0,8	0,2	%

Tabelle 5.10: Pu-Isotopenzusammensetzung in Gewichtsprozent [%] für den IMF-Benchmark gemäß Paratte et al. (2000).

Untersucht werden fünf verschiedene Brennstoff-Kombinationen, von denen drei Varianten mit WG-Plutonium, alle fünf Varianten mit RG-Plutonium zu untersuchen sind (siehe Tabelle 5.11). Für die damit definierten Brennstoff-Zusammensetzungen werden zunächst Abbrandrechnungen durchgeführt. Im Rahmen des IMF-Benchmark ist für alle Brennstoffe eine maximale Bestrahlungsdauer von 1200 FPD vorgegeben. Dabei wird allerdings für die verschiedenen Brennstoffe eine unterschiedliche Leistungsdichte definiert, so dass nicht alle Brennstoffe den selben Zielabbrand aufweisen. Für die Brennstoffe eins, zwei und fünf wird eine lineare Brennstableistung von 15 kW/m zugrundegelegt, für die Brennstoffe drei und vier dagegen eine erhöhte lineare Brennstableistung von 19 kW/m.⁶ Damit wird ein Zielabbrand von 340,8 bzw. 431,8 kWd/cm³ erreicht.

In einem zweiten Schritt sind dann für die frischen und die abgebrannten Brennstoffe Reaktivitätskoeffizienten zu bestimmen. Dabei sollen Änderungen der Bor-Konzentration im Kühlmittel, der Brennstofftemperatur und der Moderatorichte untersucht werden. Die sich ergebenden Änderungen der Reaktivität werden durch vereinfachte Reaktivitätsko-

⁶Dies entspricht einer Leistungsdichte von 284,0 bzw. 359,8 W/cm³ im Brennstoff.

effizienten der Form

$$C_x = \frac{k_\infty(x_0 + \Delta x) - k_\infty(x_0)}{k_\infty(x_0)} \cdot \frac{1}{\Delta x}$$

dargestellt (vergl. Kapitel 4.4). In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse von MCMATH-Rechnungen für den Abbrand und die verschiedenen zu bestimmenden Reaktivitätskoeffizienten mit denjenigen der Benchmark-Teilnehmer verglichen. Bei den Ergebnissen der Benchmark-Teilnehmer werden dabei jeweils die in Paratte et al. (2000) zusammengefassten Zahlenwerte wiedergegeben.

		RG-1/ WG-1	RG-2/ WG-2	RG-3	RG-4	RG-5	WG-5
Pu-Dichte	[g/cm ³]	0,5	0,6	0,7	0,7	0,6574	0,4330
Brennstoff-Zusammensetzung							
PuO ₂	[mol%]	5	5	4,4	4,4	7,26	4,78
Al ₂ O ₃	[mol%]	50	50				
ZrO ₂	[mol%]	35		94,9	95,1		
MgO	[mol%]	10	10				
ThO ₂	[mol%]		35			92,74	95,22
Er ₂ O ₃	[mol%]			0,7			
¹⁰ B	[mol%]				0,5		

Tabelle 5.11: Plutoniumgehalt und Materialzusammensetzung der verschiedenen Brennstoffe für den IMF-Benchmark gemäß Paratte et al. (2000).

Bei der Bestimmung der Reaktivitätskoeffizienten in MCMATH ist dabei eine Berechnung der Multiplikationsfaktoren mit einer hohen statistischen Genauigkeit notwendig. Daher wurden üblicherweise MCNP-Rechnungen mit 500 aktiven Zyklen und 6000 Neutronen pro Zyklus durchgeführt. Damit erzielt man eine Varianz der Multiplikationsfaktoren von kleiner 5×10^{-4} . Bei der Bestimmung des BWC sowie bei der Bestimmung des MVC beim Übergang zu einer um 10% reduzierten Moderatordichte sind diese statistischen Unsicherheiten jedoch im Vergleich zu den Änderungen der Reaktivität aufgrund der vorgenommenen Änderung der Parameter (Bor-Konzentration bzw. Moderatordichte) immer noch groß. In diesen Fällen wurden daher MCNP-Rechnungen mit 1000 aktiven Zyklen und 12000 verfolgten Neutronen durchgeführt. Damit wurde die Varianz der Ergebnisse nochmals halbiert. Auch wenn die statistischen Fehler damit immer noch vergleichbar zu den systematischen Unterschieden zwischen den Ergebnissen der übrigen Benchmark-Teilnehmer sind, wurde auf eine höhere Genauigkeit bei den MCNP-Rechnungen angesichts des stark ansteigenden Rechenzeitbedarfs verzichtet.

5.3.3 Multiplikationsfaktoren k_∞

In Tabelle 5.12 sind die Ergebnisse für die Multiplikationsfaktoren k_∞ der verschiedenen Brennstoffe sowohl zu Beginn (BOL) wie auch am Ende des Abbrands (EOL) dargestellt.

Dabei sind in der Spalte IMF-Benchmark der Mittelwert der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer $k_{\infty}(av)$ sowie die maximalen Abweichungen der Benchmark-Teilnehmer vom Mittelwert (Minimal- und Maximalwert) zusammengefasst. Für MCMATH ist der Wert von k_{∞} und die relative Abweichung von $k_{\infty}(av)$ angegeben. Die Berechnung der Multiplikationsfaktoren bei BOL und EOL wurde mit MCNP Rechnungen über 500 aktive Zyklen mit jeweils 6000 Neutronen durchgeführt, so dass sich für die Werte von k_{∞} eine statistische Genauigkeit (2σ) von besser als 0,1% ergab.

Bei BOL sind die Ergebnisse für k_{∞} für alle Gruppen in recht guter Übereinstimmung. Ergebnisse von Berechnungen, die auf den selben Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken beruhen, weisen dabei jeweils nochmals geringere Unterschiede zueinander auf. Die maximal auftretenden Abweichungen finden sich bei RG4, hier liegt der Wert einer Gruppe um 1,7% unter dem Mittelwert, alle übrigen Ergebnisse weichen dagegen 0,1–0,7% nach oben ab. Die MCMATH-Ergebnisse liegen bei BOL für alle Brennstoffe in der Bandbreite der übrigen Ergebnisse. Auch für RG4 liegt das MCMATH-Resultat mit einer Abweichung von 0,38% inmitten der Ergebnisse, die bei Vernachlässigung des stark abweichenden Wertes verbleiben.

Bei EOL treten bei den Ergebnissen für k_{∞} deutlich größere Unterschiede von über 5% (RG1) zwischen den höchsten und niedrigsten berechneten Werten auf als bei BOL. Insgesamt sind die Unterschiede auch nicht mehr wesentlich auf Differenzen in den zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückzuführen, sondern werden stärker vom verwendeten Berechnungsverfahren bestimmt.

Auch bei EOL gibt es noch eine gute Übereinstimmung zwischen den MCMATH Ergebnissen und $k_{\infty}(av)$ mit einer Abweichung von typischerweise weniger als 1%. Eine größere Abweichung tritt im Fall von RG1 mit $-2,84\%$ auf, für diesen Brennstoff weisen die Ergebnisse der übrigen Benchmark-Teilnehmer jedoch ebenfalls eine besonders hohe Streuung auf. Dies ist auf den in Relation zum anfänglichen Spaltstoffgehalt bei diesem Brennstoff sehr hohen Abbrand zurückzuführen, was sich auch im niedrigen Wert von $k_{\infty}(av)$ von 0,815 ausdrückt.

Für diejenigen Brennstoffe mit Thorium in der Matrix (WG2, RG2 und WG5, RG5) weichen die MCMATH-Ergebnisse ebenfalls stärker vom Mittelwert ab als diejenigen der anderen Gruppen und liegen systematisch unter den Werten von $k_{\infty}(av)$. Wie im nächsten Abschnitt diskutiert wird, ist die Übereinstimmung in den Nuklidkonzentrationen für die Plutonium und Americium-Isotope auch bei den Thorium-Brennstoffen sehr gut, so dass die Unterschiede in der Reaktivität hier wesentlich auf den Aufbau des U-233 aus Thorium zurückzuführen sind. Da die Ergebnisse der einzelnen Benchmark-Teilnehmer für diese Nuklide jedoch nicht gesondert vorliegen, konnte dieser Effekt nicht genauer untersucht werden. Auch beläuft sich die Abweichung der MCMATH-Werte von $k_{\infty}(av)$ immer noch auf weniger als ein Prozent, so dass die Übereinstimmung mit den Benchmark-Ergebnissen auch in den Fällen mit Thorium im Brennstoff als durchaus akzeptabel angesehen werden kann. Da im Rahmen dieser Arbeit keine Brennstoffe mit anfänglichem Thorium-Gehalt untersucht werden sollen, wurde dieser Frage daher nicht weiter nachgegangen.

Insgesamt sind die Ergebnisse der Berechnung der Multiplikationsfaktoren bei IMF damit

$k_{\infty}(\text{BOL})$				
	IMF-Benchmark		MCMATH	
	$k_{\infty}(av)$	$\Delta k_{\infty}/k_{\infty}(av)$ (Min./Max.) [%]	k_{∞} ($\pm 0,1\%$)	$\Delta k_{\infty}/k_{\infty}(av)$ [%]
WG-1	1,61948	-0,35/0,46	1,617	-0,15
RG-1	1,45054	-0,91/0,78	1,448	-0,17
WG-2	1,41554	-0,52/0,63	1,411	-0,32
RG-2	1,26219	-0,97/0,62	1,258	-0,33
RG-3	1,10352	-0,51/0,51	1,109	+0,50
RG-4	1,10580	-1,70/0,71	1,110	+0,38
WG-5	1,29162	-0,89/0,87	1,283	-0,67
RG-5	1,18994	-0,71/0,43	1,183	-0,58
$k_{\infty}(\text{EOL})$				
	IMF-Benchmark		MCMATH	
	$k_{\infty}(av)$	$\Delta k_{\infty}/k_{\infty}(av)$ (Min./Max.) [%]	k_{∞} ($\pm 0,1\%$)	$\Delta k_{\infty}/k_{\infty}(av)$ [%]
WG-1	1,02405	-1,62/0,95	1,017	-0,69
RG-1	0,81514	-2,63/2,94	0,792	-2,84
WG-2	1,08909	-0,45/0,43	1,082	-0,65
RG-2	0,99470	-0,76/0,43	0,984	-1,08
RG-3	0,90418	-1,33/1,40	0,895	-1,02
RG-4	0,95224	-0,66/0,60	0,958	+0,60
WG-5	0,96847	-0,32/0,15	0,961	-0,77
RG-5	0,99212	-0,93/0,52	0,982	-1,02

Tabelle 5.12: Mittelwert $k_{\infty}(av)$ der Multiplikationsfaktoren für die verschiedenen Brennstoffe des IMF-Benchmark bei BOL und EOL sowie die relative Abweichung der minimalen und maximalen Werte der Benchmark-Teilnehmer für k_{∞} von $k_{\infty}(av)$ gemäß Paratte et al. (2000). Die Ergebnisse für MCMATH weisen eine relative statistische Genauigkeit von 0,001 (2 σ) auf.

von einer vergleichbaren Genauigkeit wie bei der Untersuchung von MOX-Brennstoffen. Es ergibt sich eine Unsicherheit von im Mittel etwa 1–2% für k_{∞} bei EOL, sowohl für die mit MCMATH bestimmten Ergebnisse wie für die übrigen Benchmark-Teilnehmer.

5.3.4 Nuklidkonzentrationen

Die Tabellen 5.13 und 5.14 geben die Konzentrationen der wichtigsten Plutonium- bzw. Americium-Isotope bei EOL wieder. Dabei sind unter IMF sowohl der Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer $N(av)$ wie die maximal auftretenden Abweichungen angegeben. Für die MCMATH-Ergebnisse ist neben den Konzentrationen auch die Abweichung des MCMATH-Ergebnisses vom Mittelwert der Benchmark-Teilnehmer aufgeführt. Die Werte für die Pu-Isotope sind dabei jeweils auf die Anfangskonzentration N_0 bezogen, während

für die Am-Konzentrationen die Absolutwerte aufgeführt sind.

Die auftretenden Abweichungen vom Mittelwert liegen bei den Plutonium-Konzentrationen typischerweise im Bereich von 2–5%, für Isotope mit sehr geringer verbleibender Konzentration treten jedoch auch Abweichungen von über 10% auf. Die größte Unsicherheit ergibt sich im Fall von RG1, hier ergeben sich Abweichungen von über 30% für Pu-239. Allerdings beläuft sich die Konzentration des Pu-239 bei EOL auch nur noch auf etwa 1,5% der Anfangskonzentration. Berücksichtigt man diese starke Änderung der Konzentrationen der Pu-Isotope bei IMF, so sind die auftretenden Abweichungen — bezogen auf die Unsicherheiten in den Absolutwerten der Pu-Konzentrationen — vergleichbar zu den bei der Berechnung von MOX-Brennstoffen beobachteten Unsicherheiten (siehe Abschnitt 5.1).

Die mit MCMATH bestimmten Pu-Konzentrationen zeigen in fast allen Fällen eine sehr gute Übereinstimmung mit $N(av)$, bis auf wenige Ausnahmen liegt der MCMATH-Wert im Intervall der übrigen Benchmark-Teilnehmer. Eine im Vergleich zu den übrigen Teilnehmern besonders hohe Abweichung tritt für MCMATH nur bei der Pu-239-Konzentration im Falle von RG3 auf. Hier verzeichnet MCMATH einen um ca. 10% stärkeren Abbau des Pu-239 als bei $N(av)$, die übrigen Werte weichen nur um ca. -2 bzw. $+4\%$ von $N(av)$ ab. Angesichts einer totalen Reduktion des Pu-239 um 95% bezogen auf den Anfangsgehalt ist eine Abweichung um 10% jedoch nicht signifikant und vergleichbar bspw. zu den Fällen RG1 und WG1, bei denen die übrigen Teilnehmer ebenfalls höhere Abweichungen zueinander aufweisen.

Bei den Americium-Isotopen zeigen die Werte der Benchmark-Teilnehmer typischerweise Abweichungen von 10–30% vom Mittelwert $N(av)$. Lediglich für Am-243 liegen die Abweichungen zumeist unter 10%. Damit sind die Unsicherheiten ebenfalls denjenigen bei der Berechnung von MOX-Brennstoffen vergleichbar. Die mit MCMATH bestimmten Konzentrationen weichen für Am-241 und Am-242m fast immer um weniger als 10% von $N(av)$ ab und liegen immer im Intervall der Benchmark-Teilnehmer. Auch bei Am-243 zeigen die MCMATH-Werte Abweichungen von im Mittel nur 5% zu $N(av)$. Wegen der geringeren Unterschiede zwischen den Benchmark-Teilnehmern liegen die MCMATH-Werte hier daher allerdings meistens nicht im Intervall der Benchmark-Teilnehmer. Der Hauptproduktionspfad von Am-243 besteht bei den IMF-Brennstoffen im Neutroneneinfang in Pu-242 mit anschließendem β -Zerfall. Für die Unterschiede in der Am-243-Konzentration kann ein in MCMATH systematisch etwas höherer Einfangsquerschnitt des Pu-242 als Hauptursache ausgemacht werden.

Insgesamt lässt sich für die verschiedenen Pu-Isotope also typischerweise eine Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung mit MCMATH von 2–5%, bei sehr niedrigen verbleibenden Absolutkonzentrationen von 10–20% erwarten. Bei den Americium-Isotopen ergeben sich für MCMATH typischerweise Abweichungen von weniger als 10% von den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer. Auch diese Ergebnisse sind daher in guter Übereinstimmung zu den bei der Berechnung der MOX-Brennstoffe gemachten Erfahrungen.

Nuklidkonzentration (Verhältnis EOL/BOL)								
	Pu-239				Pu-240			
	IMF-Benchmark		MCMATH		IMF-Benchmark		MCMATH	
	$N(\text{av})/N_0$ [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N/N_0 [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	$N(\text{av})/N_0$ [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N/N_0 [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]
WG-1	6,7114	−10,4–5,0	6,603	−1,6	205,63	−6,1–4,2	206,4	0,4
RG-1	1,5718	−19,6–31,8	1,276	−18,8	38,064	−8,5–12,5	35,78	−6,0
WG-2	23,406	−1,8–1,8	23,59	0,8	242,85	−2,4–1,8	243,1	0,1
RG-2	14,530	−6,7–2,7	14,41	−0,8	70,037	−1,4–1,9	70,25	0,3
RG-3	5,5696	−1,8–3,9	5,037	−9,6	49,131	−3,4–2,9	48,17	−2,0
RG-4	5,3052	−8,7–11,4	4,825	−9,1	50,394	−5,1–6,1	49,19	−2,4
WG-5	11,984	−4,0–11,7	11,64	−2,9	229,30	−8,3–18,4	215,6	−6,0
RG-5	23,384	−5,9–13,5	22,56	−3,5	81,944	−6,3–14,0	78,48	−4,2
Nuklidkonzentration (Verhältnis EOL/BOL)								
	Pu-241				Pu-242			
	IMF-Benchmark		MCMATH		IMF-Benchmark		MCMATH	
	$N(\text{av})/N_0$ [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N/N_0 [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	$N(\text{av})/N_0$ [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N/N_0 [%]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]
WG-1	845,56	−3,7–4,1	876,6	3,7	1819,3	−4,7–5,6	1765	−3,0
RG-1	38,320	−7,8–10,1	37,38	−2,5	213,41	−3,5–2,7	215,7	1,1
WG-2	1009,2	−2,3–2,5	1034	2,4	930,43	−4,8–8,7	872,4	−6,2
RG-2	83,636	−5,4–3,7	86,18	3,0	157,87	−1,4–1,7	155,5	−1,5
RG-3	60,913	−3,2–2,6	61,10	0,3	178,84	−2,9–3,0	179,1	0,1
RG-4	59,915	−4,4–3,4	60,50	1,0	180,35	−5,0–3,2	182,5	1,2
WG-5	1008,3	−9,8–4,5	1061	5,3	1343,8	−15,8–8,4	1387	3,2
RG-5	90,568	−7,7–4,9	94,21	4,0	136,82	−12,1–6,3	140,6	2,8

Tabelle 5.13: Mittelwerte $N(\text{av})$ der von den Benchmark-Teilnehmern bestimmten Konzentrationen für die verschiedenen Pu-Isotope bei EOL im Verhältnis zu BOL sowie minimale und maximale relative Abweichungen gemäß Paratte et al. (2000) im Vergleich zu den mit MCMATH bestimmten Werten.

Nuklidkonzentration (EOL)								
	Am-241				Am-242m			
	IMF-Benchmark		MCMATH		IMF-Benchmark		MCMATH	
	N(av) [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N(av) [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]
WG-1	3,8320e-6	-26,5-15,6	4,277e-6	11,6	6,2296e-8	-35,6-36,3	6,252e-8	0,4
RG-1	3,4946e-6	-13,7-13,4	3,562e-6	1,9	5,1262e-8	-25,0-32,6	4,742e-8	-7,5
WG-2	6,6774e-6	-22,0-10,9	7,299e-6	9,3	1,3998e-7	-15,0-28,3	1,288e-7	-8,0
RG-2	1,2932e-5	-13,6-8,8	1,371e-5	6,0	2,8358e-7	-20,4-26,7	2,537e-7	-10,6
RG-3	9,1489e-6	-6,3-8,1	9,261e-6	1,2	1,7019e-7	-16,4-28,0	1,539e-7	-9,6
RG-4	8,6332e-6	-15,0-12,2	9,039e-6	4,7	1,5908e-7	-24,8-31,9	1,482e-7	-6,8
WG-5	4,7438e-6	-17,0-9,0	5,159e-6	8,7	9,4049e-8	-17,0-28,0	8,843e-8	-6,0
RG-5	1,6849e-5	-12,6-8,6	1,795e-5	6,5	3,9651e-7	-19,0-28,5	3,552e-7	-10,4
Nuklidkonzentration (EOL)								
	Am-243							
	IMF-Benchmark		MCMATH					
	N(av) [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]	N [10 ²⁴ /cm ³]	$\Delta N/N(\text{av})$ [%]				
WG-1	9,0237e-6	-7,2-7,7	9,589e-6	6,3				
RG-1	3,1764e-5	-1,8-3,4	3,328e-5	4,8				
WG-2	5,9433e-6	-4,9-3,4	6,384e-6	7,4				
RG-2	2,9642e-5	-1,1-1,3	3,129e-5	5,6				
RG-3	4,1220e-5	-1,8-2,4	4,300e-5	4,3				
RG-4	4,0650e-5	-1,2-2,3	4,164e-5	2,5				
WG-5	6,5960e-6	-18,4-8,8	7,429e-6	12,6				
RG-5	3,0127e-5	-14,9-27,4	3,041e-5	0,9				

Tabelle 5.14: Mittelwerte $N(\text{av})$ der von den Benchmark-Teilnehmern bestimmten Konzentrationen für die verschiedenen Am-Isotope bei EOL und minimale und maximale relative Abweichungen gemäß Paratte et al. (2000), im Vergleich zu den mit MCMATH bestimmten Werten.

5.3.5 Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)

Für die verschiedenen untersuchten Brennstoffe soll in einem weiteren Schritt der Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC) bei einem Übergang von 873 K auf 1173 K Brennstofftemperatur bestimmt werden. Tabelle 5.15 fasst die Mittelwerte $C_T(av)$ der Benchmark-Teilnehmer bei BOL und EOL sowie die minimalen und maximalen Abweichungen vom Mittelwert $C_T - C_T(av)$ zusammen. Die Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer zeigen für alle Brennstoff-Kombinationen absolute Abweichungen um $\pm 0,1$ – $0,3$ pcm/K. Bei den Brennstoffen mit Thorium in der Matrix, welche einen stark negativen FTC (-3 – -4 pcm/K) aufweisen, resultieren damit relative Fehler unter 10%. Bei den übrigen Brennstoffen ergeben sich zum Teil mittlere Werte des FTC zwischen Null und -1 pcm/K, so dass beträchtliche relative Fehler auftreten. Bei einer Gruppe wird die Resonanzselbstabschirmung von Pu-Isotopen schwerer als Pu-240 nicht erfasst, die Rechnungen dieser Gruppe liefern für alle RG-Brennstoffe daher Werte, die systematisch um $0,25$ – $0,4$ pcm/K über $C_T(av)$ liegen. Insbesondere bei EOL treten jedoch auch für andere Gruppen absolute Fehler größer als $\pm 0,3$ pcm/K auf, für den FTC kann also keine befriedigende Übereinstimmung unter den Benchmark-Teilnehmern festgestellt werden.

Für die Nachrechnung im Rahmen von MCMATH stellt sich das Problem, dass nur für ausgewählte Temperaturen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken für MCNP vorliegen (siehe Anhang F). Damit ist es nicht möglich, den im Benchmark vorgesehenen Übergang der Brennstofftemperatur zu untersuchen. Vielmehr wurde daher eine Änderung der Brennstofftemperatur von 900 K auf 600 K betrachtet. Dies entspricht ebenfalls einer Änderung der Brennstofftemperatur um 300 K wie im Benchmark vorgegeben. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der FTC ist jedoch zu erwarten, dass sich beim Übergang von 900 K auf 600 K ein anderer Wert für den FTC ergibt als beim Übergang von 900 K auf 1200 K. Der FTC wird wesentlich durch den Effekt der Resonanzselbstabschirmung bestimmt. Bei höherer Temperatur weisen die Resonanzen aufgrund der Dopplerverbreiterung bereits eine größere Breite auf, damit ist die energetische Selbstabschirmung der Resonanz nicht mehr so ausgeprägt. In der Regel ist damit der Wert des FTC bei Übergang zwischen hohen Temperaturen nicht so stark negativ wie beim Übergang zwischen niedrigeren Temperaturen.

Da mit MCMATH nicht der vorgegebene Übergang zwischen 900 K und 1200 K untersucht werden kann, wird daher außer einer Änderung der Brennstofftemperatur von 900 K auf 600 K zusätzlich der FTC beim Übergang von 600 K Brennstoff-Temperatur auf 300 K bestimmt. Dies ermöglicht eine qualitative Abschätzung der Temperaturabhängigkeit des FTC. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.15 wiedergegeben. Bei der Bestimmung des FTC für eine Temperaturänderung um 300 K ergeben sich bei den hier im Rahmen von MCMATH durchgeführten MCNP-Berechnungen typische statistische Unsicherheiten von $\pm 0,2$ pcm/K. Diese könnten durch längere MCNP-Läufe weiter reduziert werden. Angesichts der bei den Benchmark-Teilnehmern festgestellten Abweichungen, die ebenfalls zwischen $\pm 0,1$ – $0,3$ pcm/K liegen, sowie den systematisch zu erwartenden Unsicherheiten aufgrund der abweichenden Brennstoff-Temperaturen, wurde jedoch darauf verzichtet, Rechnungen mit einer höheren statistischen Genauigkeit durchzuführen.

FTC						
	BOL					
	IMF-Benchmark		MCMATH			
	(873 K \rightarrow 1173 K)		(900 K \rightarrow 600 K)		(600 K \rightarrow 300 K)	
	$C_T(av)$	$C_T - C_T(av)$	$C_T \pm 0,2$	$C_T - C_T(av)$	$C_T \pm 0,2$	$C_T - C_T(av)$
WG-1	-1,217	-0,16-0,06	-1,3	-0,1	-1,7	-0,5
RG-1	-1,339	-0,24-0,24	-1,6	-0,3	-1,8	-0,5
WG-2	-3,195	-0,12-0,09	-3,6	-0,4	-4,9	-1,7
RG-2	-3,293	-0,13-0,31	-3,8	-0,5	-5,1	-1,8
RG-3	-1,661	-0,17-0,21	-1,7	0,0	-2,5	-0,8
RG-4	-0,731	-0,27-0,24	-0,8	-0,1	-1,3	-0,6
WG-5	-3,706	-0,10-0,11	-4,1	-0,4	-5,8	-2,1
RG-5	-3,714	-0,20-0,35	-4,5	-0,8	-5,8	-2,1
	EOL					
	IMF-Benchmark		MCMATH			
	(873 K \rightarrow 1173 K)		(900 K \rightarrow 600 K)		(600 K \rightarrow 300 K)	
	$C_T(av)$	$C_T - C_T(av)$	$C_T \pm 0,2$	$C_T - C_T(av)$	$C_T \pm 0,2$	$C_T - C_T(av)$
WG-1	-0,663	-0,24-0,31	-1,0	-0,3	-1,2	-0,5
RG-1	-0,593	-0,37-0,55	-1,0	-0,4	-1,5	-0,9
WG-2	-2,952	-0,13-0,13	-3,1	-0,1	-4,9	-1,9
RG-2	-3,128	-0,19-0,35	-3,6	-0,5	-5,2	-2,1
RG-3	-1,289	-0,20-0,25	-1,5	-0,2	-2,1	-0,8
RG-4	-1,060	-0,31-0,36	-1,7	-0,6	-1,6	-0,5
WG-5	-3,525	-0,21-0,14	-3,8	-0,3	-5,8	-2,3
RG-5	-3,630	-0,24-0,41	-4,4	-0,8	-6,0	-2,4

Tabelle 5.15: Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer für den Brennstoff-Temperaturkoeffizienten $C_T(av)$ beim Übergang von 873 K nach 1173 K Brennstoff-Temperatur sowie minimale und maximale absolute Abweichungen bei BOL und EOL gemäß Paratte et al. (2000). Alle Angaben in [pcm/K]. Die Ergebnisse für C_T bei MCMATH weisen eine statistische Genauigkeit von $\pm 0,2$ pcm/K (2σ) auf.

Bei BOL zeigen die mit MCMATH bestimmten Werte des FTC beim Übergang von 900 K auf 600 K eine sehr gute Übereinstimmung mit $C_T(av)$, alle Werte sind systematisch etwas stärker negativ als die Werte für $C_T(av)$. Für die Brennstoffe mit Thorium in der Matrix (WG2, RG2 und WG5, RG5) treten größere Abweichungen von $-0,4$ – $-0,8$ pcm/K auf. Wie der Vergleich mit den für den Übergang von 600 K auf 300 K bestimmten Werten zeigt, sind diese systematisch unter $C_T(av)$ liegenden Ergebnisse von MCMATH auf die Temperaturabhängigkeit des FTC zurückzuführen. So liegen die Werte des FTC bei allen Brennstoffen beim Übergang von 600 K auf 300 K signifikant unter den Werten beim Übergang von 900 K auf 600 K, insbesondere bei den Brennstoffen mit Thorium in der Matrix ist der Wert des FTC in ersterem Fall um bis zu $-2,1$ pcm/K niedriger als bei der zweiten Temperaturdifferenz.

Da für einige wesentliche Nuklide⁷ in der UTXS-Bibliothek Wirkungsquerschnitte bei 900 K und 1154 K für MCNP vorliegen, kann zumindest für die Brennstoffe bei BOL zusätzlich ein Wert des FTC für diese Temperaturänderung bestimmt werden.⁸ Die Ergebnisse für diese Rechnungen werden in Tabelle 5.16 mit den bisher bestimmten Werten verglichen.

FTC bei BOL				
	IMF-Benchmark	MCMATH		
		Bibliothek: UTXS	Bibliothek: E6	
	1173 K → 873 K	1154 K → 900 K	900 K → 600 K	600 K → 300 K
	$C_T(av)$ ($C_T - C_T(av)$)	$C_T \pm 0,2$ ($C_T - C_T(av)$)	$C_T \pm 0,2$ ($C_T - C_T(av)$)	$C_T \pm 0,2$ ($C_T - C_T(av)$)
WG-1	-1,217 (-0,16 - +0,06)	-1,3 (-0,1)	-1,3 (-0,1)	-1,7 (-0,5)
RG-1	-1,339 (-0,24 - +0,24)	-1,5 (-0,2)	-1,6 (-0,3)	-1,8 (-0,5)
WG-2	-3,195 (-0,12 - +0,09)	-3,2 (0,0)	-3,6 (-0,4)	-4,9 (-1,7)
RG-2	-3,293 (-0,13 - +0,31)	-3,5 (-0,2)	-3,8 (-0,5)	-5,1 (-1,8)
RG-3	-1,661 (-0,17 - +0,21)	-1,6 (-0,1)	-1,7 (0,0)	-2,5 (+0,8)
RG-4	-0,731 (-0,27 - +0,24)	-0,6 (+0,1)	-0,8 (-0,1)	-1,3 (-0,6)
WG-5	-3,706 (-0,10 - +0,11)	-3,5 (+0,2)	-4,1 (-0,4)	-5,8 (-2,1)
RG-5	-3,714 (-0,20 - +0,35)	-3,7 (+0,0)	-4,5 (-0,8)	-5,8 (-2,1)

Tabelle 5.16: Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer für den Brennstoff-Temperaturkoeffizienten $C_T(av)$ beim Übergang von 873 K nach 1173 K Brennstoff-Temperatur sowie minimale und maximale absolute Abweichungen bei BOL gemäß Paratte et al. (2000) sowie C_T in Abhängigkeit von der in MCNP verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliothek. Alle Angaben in [pcm/K]. Die Ergebnisse für C_T bei MCMATH weisen eine statistische Genauigkeit von $\pm 0,2$ pcm/K (2σ) auf.

Die bereits festgestellte Abhängigkeit des FTC von der Temperatur wird mit diesen Werten nochmals bestätigt. Die mit der UTXS-Bibliothek bestimmten Werte für den FTC weichen in allen Fällen um maximal $\pm 0,2$ pcm/K von $C_T(av)$ ab, eine systematische Abweichung von $C_T(av)$ kann dabei nicht mehr festgestellt werden. Speziell auch bei den Brennstoffen mit Thorium in der Matrix, die bisher die größten Abweichungen von $C_T(av)$

⁷So liegen insbesondere für die Isotope des Urans und des Plutoniums, aber auch für die wesentlichen Erbium-Isotope 166, 167 und 170 Querschnitte bei diesen Temperaturen vor.

⁸Bei EOL spielen eine Vielzahl weiterer Nuklide, sowohl der Aktinide wie der Spaltprodukte, eine Rolle, so dass hier keine Werte für den FTC unter Verwendung der UTXS-Bibliothek bestimmt wurden.

aufwiesen, ist die Übereinstimmung in diesem Fall sehr gut. Gegenüber den mit der E6-Bibliothek beim Übergang von 900 K nach 600 K bestimmten Werten sind die Ergebnisse für die UTXS-Bibliothek ebenso wie $C_T(av)$ systematisch weniger negativ.

Damit kann zusammenfassend festgehalten werden, dass die für eine Änderung der Brennstoff-Temperatur um 300 K bestimmten Werte für den FTC im Rahmen der statistischen Genauigkeit sehr gut mit den Mittelwerten der Benchmark-Teilnehmer $C_T(av)$ übereinstimmen. Bei der Berechnung von Brennstoff-Temperaturkoeffizienten im Rahmen von MCMATH ist man jedoch an die durch das Vorliegen von geeigneten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken bestimmten Brennstoff-Temperaturen gebunden. Für beliebige Änderungen der Brennstoff-Temperatur können daher nicht ohne weiteres Werte des FTC angegeben werden. Allerdings kann ebenfalls festgehalten werden, dass für die reinen IMF-Brennstoffe (d. h. ohne Uran oder auch Thorium im Brennstoff) die Temperaturabhängigkeit des FTC wesentlich schwächer ausgeprägt ist als bei den Brennstoffen mit Thorium in der Matrix. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten IMF wird daher im Folgenden üblicherweise der FTC für einen Übergang von 900 K auf 300 K bestimmt werden.⁹

5.3.6 Moderator-dichte-Koeffizient (MVC)

In einem weiteren Schritt der Validierung soll nach Paratte et al. (2000) der Einfluss einer Änderung der Moderator-dichte auf die Reaktivität untersucht werden (Moderator Void Coefficient, MVC). Hierzu soll einmal der Übergang von 100% auf 90%, des weiteren der Übergang von 100% auf 5% Moderator-dichte untersucht werden. Die berechneten Mittelwerte der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer $C_V(av)$ sowie die maximalen Abweichungen sind in Tabelle 5.17 zusammengefasst und die mit MCMATH bestimmten Werte sind diesen gegenübergestellt.

Für den Übergang von 100% auf 90% Moderator-dichte ergeben sich sowohl bei BOL wie bei EOL deutlich negative Werte für $C_V(av)$. Dabei können die Abweichungen zwischen den Benchmark-Teilnehmern mit absoluten Unterschieden von ca. ± 5 pcm/% als durchaus akzeptabel angesehen werden (Paratte et al., 2000). Für die Untersuchung des MVC mit MCMATH beim Übergang von 100% auf 90% Moderator-dichte wurden Rechnungen in MCNP mit 12.000 Neutronen pro Zyklus über 1000 aktive Zyklen durchgeführt. Aufgrund der geringen resultierenden Änderung der Reaktivität sind die Ergebnisse für C_V auch bei diesen umfangreichen Rechnungen immer noch mit einer statistischen Unsicherheit (2σ) von ± 5 –10 pcm/% (entsprechend etwa 10% der sich ergebenden Absolutwerte) behaftet, die damit vergleichbar groß oder größer als die beobachteten Unterschiede zwischen den mit MCMATH ermittelten Werten für C_V und $C_V(av)$ ist. Da die allgemeine Übereinstimmung der MCMATH-Werte mit $C_V(av)$ jedoch sehr zufriedenstellend ist wurde aus Gründen der Rechenzeit darauf verzichtet, noch genauere MCNP-Rechnungen durchzuführen um die statistische Genauigkeit zu erhöhen.

⁹Aufgrund der größeren Temperaturdifferenz wird bei gleichbleibender Rechenzeit einen geringerer relativer Fehler erzielt.

Beim Übergang von 100% auf 5% Moderatorichte weisen die Brennstoffe RG1 sowie RG3 und RG4 bei BOL positive Werte für die Reaktivitätskoeffizienten $C_V(av)$ auf. Für die übrigen Brennstoffe, insbesondere diejenigen mit Thorium in der Matrix, ergeben sich dagegen stark negative Werte. Bei EOL weisen dann alle Brennstoffe wieder negative Werte für den Reaktivitätskoeffizienten $C_V(av)$ auf. Insgesamt treten in diesem Fall wesentlich größere Abweichungen zwischen den Benchmark-Teilnehmern von bis zu ± 30 pcm/%, sowohl bei BOL wie bei EOL auf. Dabei sind diese Unsicherheiten bei EOL aufgrund der sehr stark negativen Werte von $C_V(av)$ nicht relevant, bei BOL jedoch sind diese Abweichungen zu groß, um als akzeptabel angesehen werden zu können (Paratte et al., 2000). Genauere Untersuchungen im Rahmen des IMF-Benchmark haben gezeigt, dass bereits die Unsicherheiten in den Wirkungsquerschnitten des Zirkonium bei BOL für Abweichungen von 10–20 pcm/% verantwortlich sein können.¹⁰ Hier wäre daher eine Verbesserung der Datenbasis für genauere Berechnungen eine Voraussetzung (Paratte et al., 2000). Auch hier weisen die mit MCMATH bestimmten Werte vergleichbar große Abweichungen zu den Mittelwerten auf wie diejenigen der Benchmark-Teilnehmer, wobei jedoch in einigen Fällen die mit MCMATH bestimmten Werte nicht mehr in das Intervall der Werte der Benchmark-Teilnehmer fallen. Insbesondere bei BOL weisen damit auch die MCMATH-Werte zum Teil hohe relative Abweichungen zu den Mittelwerten auf. Da diese jedoch bereits bei den Benchmark-Teilnehmern zu einem relevanten Anteil auf Differenzen in den zugrundeliegenden Wirkungsquerschnitten zurückgeführt werden konnten, wird im weiteren davon ausgegangen, dass sich die auftretenden Unterschiede bei Verwendung von einheitlichen Daten weiter reduzieren lassen könnten.

Insgesamt kann daher für die mit MCMATH berechneten Werte für C_V eine Unsicherheit in der Größenordnung von 10 pcm/% (absolute Unsicherheiten, entsprechen typischerweise ca. 10% relativem Fehler) festgehalten werden. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit den für MOX-Brennstoffe bestimmten systematischen Unsicherheiten bei der Bestimmung des MVC (siehe Abschnitt 5.2).

¹⁰Dabei handelt es sich insbesondere um Differenzen in den Wirkungsquerschnitten bei hohen Neutronenenergien, die gerade im Fall der sehr geringen Moderatorichte deutlich an Bedeutung gewinnen.

MVC (100% → 90%)								
	BOL				EOL			
	IMF-Benchmark		MCMATH		IMF-Benchmark		MCMATH	
	$C_V(av)$	$C_V - C_V(av)$	C_V	$C_V - C_V(av)$	$C_V(av)$	$C_V - C_V(av)$	C_V	$C_V - C_V(av)$
WG-1	-52,3	-5,7-3,2	-47±4	5,3	-111,5	-2,1-4,7	-126±8	-14,5
RG-1	-87,6	-3,4-1,7	-82±6	5,6	-88,9	-2,2-3,7	-97±9	-8,1
WG-2	-133,8	-4,8-6,2	-135±5	-1,2	-173,6	-3,9-5,0	-181±7	-7,4
RG-2	-162,2	-1,8-4,4	-162±7	0,2	-182,0	-4,9-11,9	-194±8	-12,0
RG-3	-134,4	-2,6-5,1	-132±6	2,4	-199,3	-6,3-5,7	-200±9	-0,7
RG-4	-58,7	-6,6-4,2	-56±7	2,7	-168,4	-4,9-12,3	-166±9	2,4
WG-5	-170,6	-2,3-4,7	-174±5	-3,4	-164,1	-4,7-4,2	-174±7	-9,9
RG-5	-182,0	-2,6-3,5	-187±7	-5,0	-184,0	-4,4-3,7	-190±7	-6,0
MVC (100% → 5%)								
	BOL				EOL			
	IMF-Benchmark		MCMATH		IMF-Benchmark		MCMATH	
	$C_V(av)$	$C_V - C_V(av)$	$C_V \pm 2$	$C_V - C_V(av)$	$C_V(av)$	$C_V - C_V(av)$	$C_V \pm 2$	$C_V - C_V(av)$
WG-1	-42,7	-16,3-9,6	-33	9,7	-405,7	-11,3-14,5	-393	12,7
RG-1	0,97	-18,6-11,2	18	17,0	-498,0	-8,0-7,3	-497	1,0
WG-2	-303,9	-5,9-5,4	-315	-11,1	-387,2	-5,8-6,2	-393	-5,8
RG-2	-275,9	-6,0-6,5	-283	-7,1	-390,3	-6,8-8,3	-394	-3,7
RG-3	72,6	-30,0-24,6	100	27,4	-431,8	-13,9-14,3	-432	-0,2
RG-4	106,9	-27,1-19,6	120	13,1	-407,7	-20,3-15,2	-324	83,7
WG-5	-480,6	-9,5-7,3	-501	-20,4	-495,1	-8,4-9,1	-506	-10,9
RG-5	-344,0	-12,5-10,5	-363	-19,0	-390,4	-9,8-8,4	-399	-8,6

Tabelle 5.17: Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer für den Moderator-dichte-Koeffizienten $C_V(av)$ beim Übergang von 100 auf 90% und 100 auf 5% Moderator-dichte sowie minimale und maximale absolute Abweichungen bei BOL und EOL gemäß Paratte et al. (2000) im Vergleich zu den mit MCMATH bestimmten Werten. Alle Angaben in [pcm/%].

5.3.7 Bor-Wirksamkeit (BWC)

Abschließend wird im Rahmen des IMF-Benchmark die Bor-Wirksamkeit beim Übergang von Null auf 500 ppm Bor im Kühlmittel bestimmt. Die Mittelwerte der Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer $C_B(av)$ sowie die minimalen und maximalen relativen Abweichungen sind in Tabelle 5.18 zusammengefasst.

BWC (0 ppm \rightarrow 500 ppm)				
	BOL			
	IMF		MCMATH	
	$C_B(av)$	$\Delta C_B/C_B(av)$ [%]	C_B $\pm 0,1$	$\Delta C_B/C_B(av)$ [%]
WG-1	-3,844	-6,9–3,0	-3,8	-1,1
RG-1	-4,113	-6,9–3,7	-4,0	-2,7
WG-2	-3,279	-6,8–2,9	-3,3	0,6
RG-2	-3,418	-7,0–3,8	-3,4	-0,5
RG-3	-2,829	-6,0–3,5	-2,8	-1,0
RG-4	-2,436	-7,1–4,1	-2,4	-1,5
WG-5	-3,871	-6,9–3,4	-3,8	-1,8
RG-5	-3,092	-6,9–3,8	-3,1	0,3
	EOL			
	IMF		MCMATH	
	$C_B(av)$	$\Delta C_B/C_B(av)$ [%]	C_B $\pm 0,2$	$\Delta C_B/C_B(av)$ [%]
WG-1	-11,873	-10,7–4,3	-11,5	-3,1
RG-1	-18,797	-11,1–7,0	-18,8	0,0
WG-2	-4,728	-7,5–2,5	-4,6	-2,7
RG-2	-5,626	-6,3–3,7	-5,5	-2,2
RG-3	-9,297	-7,4–4,6	-9,3	0,0
RG-4	-9,724	-10,0–3,2	-9,6	-1,3
WG-5	-5,834	-7,3–3,2	-5,7	-2,3
RG-5	-3,977	-6,7–3,2	-3,8	-4,5

Tabelle 5.18: Mittelwerte der Benchmark-Teilnehmer für den Bor-Koeffizienten $C_B(av)$ beim Übergang von 0 auf 500 ppm Bor im Kühlmittel sowie minimale und maximale Abweichungen bei BOL und EOL gemäß Paratte et al. (2000), sowie die mit MCMATH bestimmten Werte. Alle Angaben für C_B in [pcm/ppm], Abweichungen in [%].

Die Ergebnisse der Benchmark-Teilnehmer sind bei BOL in sehr guter Übereinstimmung mit Abweichungen zu $C_B(av)$ von maximal ca. $\pm 7\%$. Bei EOL treten etwas höhere Abweichungen von bis zu $\pm 11\%$ auf. Dabei weichen die Werte einer Gruppe systematisch um -7 bis -11% vom Mittelwert ab, die Werte der übrigen Gruppen zeigen bei BOL wie EOL immer weniger als 5% Abweichung zum Mittelwert.

Auch die MCMATH-Ergebnisse zeigen eine hervorragende Übereinstimmung mit $C_B(av)$.

Bei BOL liegen die Abweichungen praktisch immer unter 2%, bei EOL typischerweise unter 3%. Damit ist der Unterschied zwischen den MCMATH-Ergebnissen und $C_B(av)$ praktisch immer kleiner als die statistischen Unsicherheiten. Für die Berechnung des BWC wurden die Rechnungen in MCNP mit 1000 aktiven Zyklen und 12000 Neutronen pro Zyklus durchgeführt. Angesichts des hohen Rechenzeitaufwands und der damit Erreichten sehr guten Übereinstimmung des BWC mit den Ergebnissen der übrigen Benchmark-Teilnehmer wurde darauf verzichtet, Rechnungen mit einer noch höheren statistischen Genauigkeit durchzuführen. Die hier erzielte Genauigkeit der Bestimmung des BWC kann als vollkommen zufriedenstellend angesehen werden.

5.3.8 Zusammenfassung

Insgesamt lassen sich damit für die mit MCMATH bestimmten Ergebnisse sowohl hinsichtlich der Berechnung der abbrandabhängigen Reaktivität als auch der Nuklidzusammensetzung bei uranfreien Brennstoffen eine hohe Genauigkeit im Vergleich mit anderen Programmsystemen zur Berechnung des Abbrands festhalten. Für die Bestimmung der Reaktivität ist bei EOL noch eine Genauigkeit in der Größenordnung von 1-2%, bei den wichtigen Isotopen des Plutoniums von 2-10% in Abhängigkeit von der verbleibenden Absolutkonzentration zu erwarten.

Bei der Bestimmung von Reaktivitätskoeffizienten zeigen sich zum Teil größere Unsicherheiten. Für den FTC sind diese wesentlich auf Beschränkungen hinsichtlich der in MCMATH zur Verfügung stehenden Datenbasis (verfügbare Temperaturen der Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken) zurückzuführen. Bei einer Beschränkung auf Berechnungen bei den in MCMATH verfügbaren Temperaturen kann jedoch von einer zufriedenstellenden Genauigkeit (Abweichungen von etwa $\pm 0,2$ pcm/K) ausgegangen werden. Anders stellt sich die Situation bei der Berechnung des MVC dar. Hier zeigen sich bei geringen Änderungen der Moderatorichte Abweichungen in der Größenordnung von 5–10 pcm/%, bei einer starken Änderung von ca. 10–20 pcm/%. Hierfür sind allerdings vermutlich Differenzen in den verschiedenen zugrundegelegten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken verantwortlich zu machen. Die Bestimmung des BWC zeigt demgegenüber eine sehr gute Übereinstimmung sowohl der Benchmark-Teilnehmer untereinander als auch der mit MCMATH bestimmten Werte. Auftretende Unterschiede sind hier auch bei EOL mit 2–4% noch äußerst gering.

Kapitel 6

Erreichbarer Entladeabbrand B_d und Lineares Reaktivitätsmodell

Für Aussagen über den erreichbaren Plutoniumumsatz in IMF ist es wesentlich, den mit einem gegebenen Brennstoff zu erreichenden Abbrand zu bestimmen. Dabei gibt es einerseits neutronenphysikalische Beschränkungen für den erreichbaren Abbrand, andererseits ist die maximal mögliche Bestrahlung eines Brennstoffs auch durch Materialeigenschaften begrenzt.

Zwei wesentliche Effekte sind unter Berücksichtigung von neutronenphysikalischen Überlegungen für die Begrenzung des erreichbaren Abbrands zu beachten. So muss einerseits die Reaktivität des Brennstoffs stets hoch genug sein, damit ein Reaktor im kritischen Zustand gehalten werden kann. Man kann die effektive Reaktivität eines Reaktors in guter Näherung aus den Reaktivitäten der enthaltenen Brennelemente mit unterschiedlichem Abbrand bestimmen (s. u.). Typischerweise erlaubt eine möglichst hohe anfängliche Reaktivität einen hohen Abbrand des Brennstoffs. Andererseits kommt es bei der Mischung von frischen und teilabgebrannten Brennelementen im Reaktorkern zu Leistungsdichteunterschieden, die zu Leistungsspitzen im frischen Brennstoff führen. Dies führt zur Notwendigkeit, die Reaktivitätsunterschiede zwischen frischem und teilabgebranntem Brennstoff zu begrenzen. Hierfür können bspw. brennbare Neutronengifte verwendet werden. Auf diesen Aspekt wird im Rahmen dieser Arbeit, aufgrund der Beschränkung auf einfache Zellrechnungen, jedoch nicht weiter eingegangen.

Die Reaktivität des frischen Brennstoffs wird dabei zunächst ebenso durch Materialeigenschaften (Plutoniumkonzentration und -isotopenvektor, Konzentration von brennbaren Neutronengiften, Matrix- und Strukturmaterialien) wie durch geometrische Eigenschaften (Volumenverhältnis Brennstoff zu Moderator, Heterogenität Brennstab/Moderator) sowie Betriebsbedingungen (Temperaturen, Dichten) bestimmt. Da im Rahmen dieser Arbeit davon ausgegangen werden soll, das IMF mit möglichst geringfügigen Änderungen in existierenden LWR eingesetzt werden sollen, werden sowohl hinsichtlich der geometrischen Eigenschaften wie der Betriebsbedingungen für IMF die gleichen Werte zugrundegelegt wie für herkömmlichen Uran- oder MOX-Brennstoff. Damit ergeben sich noch

wesentliche Freiheiten hinsichtlich der Wahl der anfänglichen Plutonium-Konzentration und der Verwendung von brennbaren Neutronengiften. Auch können unterschiedliche Isotopenzusammensetzungen des verwendeten Plutoniums eine wichtige Rolle spielen. Diese Faktoren werden in den folgenden Kapiteln ausführlich untersucht.

Beschränkungen des Abbrands durch Materialeigenschaften sind auf Ermüdungserscheinungen (bspw. hinsichtlich der Spaltgasfreisetzung) zurückzuführen. Der aus materialtechnischer Sicht erreichbare Abbrand kann sowohl vom Herstellungsprozess, von der konkreten verwendeten Brennstoffzusammensetzung wie auch dem Bestrahlungsverlauf abhängen. Erste Bestrahlungsversuche für IMF werden zur Zeit durchgeführt (siehe Kapitel 2.5).

Als Orientierung für mögliche Zielabbrände sollen dabei im Folgenden die heute mit plutoniumhaltigen Brennstoffen (MOX) erreichten Abbrände herangezogen werden. So wurden bis Ende 1999 aus deutschen Kernkraftwerken 498 abgebrannte MOX-Brennelemente entladen. Dabei wurde ein maximaler Abbrand von 50 MWd/kg(HM) erreicht, der mittlere Abbrand betrug ca. 40 MWd/kg(HM) (Etmuss und Bröskamp, 2000). Da ein hoher Abbrand u. a. insofern Vorteile bietet, dass weniger Brennelemente gefertigt werden müssen, soll im weiteren davon ausgegangen werden, dass für zukünftige plutoniumhaltige Brennstoffe (sowohl MOX als auch IMF) ein maximaler Zielabbrand von 50 MWd/kg(HM) aus materialtechnischer Sicht sowohl anzustreben ist als auch verwirklicht werden kann.¹

Im Folgenden soll daher untersucht werden, welche Konsequenzen sich hieraus für die Anfangszusammensetzungen von IMF (Pu-Gehalt, brennbare Neutronengifte) aus neutronenphysikalischer Sicht ergeben. Dabei wird in Kapitel 7 untersucht, ob und wie die notwendige Anfangsreaktivität zum Erreichen eines solchen Abbrands zur Verfügung gestellt werden kann. In einem zweiten Schritt folgen ab Kapitel 8 dann Überlegungen zur Reaktivitätskontrolle durch brennbare Neutronengifte.

6.1 Lineares Reaktivitätsmodell

Wesentliches Ziel dieser Arbeit ist ein Vergleich mehrerer für den Abbau von Plutonium verwendbarer Brennstoff-Typen. Wie in Kapitel 3 bereits diskutiert, werden hierzu aus neutronenphysikalischer Sicht wesentliche sicherheitsrelevante Parameter sowie Bewertungskriterien aus Sicht der Nichtverbreitung von Kernwaffen herangezogen.

Bei der Bestimmung der Indikatoren zur Bewertung der verschiedenen Brennstoff-Typen (Anteil des verbleibenden Plutoniums, Isotopenzusammensetzung des verbleibenden Plutoniums etc.), geht wesentlich der mit einem jeweiligen Brennstoff erreichbare Abbrand (Burnup, B) bei vorgegebener Brennstoffzusammensetzung ein. Bei vorgegebenem Pu-Anfangsgehalt führt eine Erhöhung des Abbrands zu einem geringeren verbleibenden Anteil des Plutoniums, auch werden mit steigendem Abbrand zunehmend nur schwerere Pu-Isotope im abgebrannten Brennstoff verbleiben. Bei einer Bewertung von unterschiedlichen

¹Auch kann bei höheren Abbränden ggf. die Zykluslänge erhöht werden, was zu geringeren Stillstandszeiten der Anlage und damit einer höheren Anlagenverfügbarkeit führen könnte.

Brennstoffen ist es daher sinnvoll, Brennstoffe mit gleichem erreichbarem Entladeabbbrand zu vergleichen.

Eine exakte Bestimmung des erreichbaren Entladeabbrands setzt allerdings theoretisch umfangreichere Reaktorabbrandrechnungen für jeden betrachteten Brennstoff voraus. Da hier eine breite Palette von verschiedenen Brennstoffen und unterschiedlichen Brennstoffzusammensetzungen untersucht werden soll, wird ein vereinfachendes Modell zur Bestimmung des erreichbaren Abbrands (lineares Reaktivitätsmodell) verwendet (Driscoll et al., 1990; Emendörfer und Höcker, 1993), welches auf den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten umfangreichen Zell-Abbrandrechnungen aufbauen kann.

6.1.1 Wesentliche Grundannahmen des linearen Reaktivitätsmodells

Es gehen nach Driscoll et al. (1990) folgende wesentliche Annahmen in die Bestimmung des erreichbaren Entladeabbrands (discharge burnup) B_d ein:

- ρ_∞ und ρ_{eff} sind für einen großen thermischen Reaktor nahezu gleich, es kann zunächst mit ρ_∞ gerechnet, und später eine Korrektur für Neutronenverluste eingeführt werden.
- Bei der Reaktivität handelt es sich um eine Zustandsfunktion des Abbrands B : $\rho_\infty \rightarrow \rho_\infty(B)$. Die genaue Bestrahlungsgeschichte eines Brennelements (Position im Reaktorkern, Bor-Konzentration im Verlaufes des Abbrands, Stillstandszeiten des Reaktors) beeinflusst zwar die tatsächliche Reaktivität eines konkreten Brennelements zu einem bestimmten Abbrandzeitpunkt, für ein typisches Brennelement wird jedoch bei Verwenden geeigneter Mittelwerte im Rahmen von Zell-Abbrandrechnungen eine gute Übereinstimmung mit den mittleren Werten mehrerer Brennelemente erreicht.
- Bei vorgegebener (konstanter) Leistungsdichte p ist ein bestimmter Abbrand B proportional zur Bestrahlungsdauer t :

$$B/(kWd/cm^3) = 10^{-3} \cdot p/(W/cm^3) \cdot t/(FPD). \quad (6.1)$$

Im Folgenden können daher Abbrand und Bestrahlungsdauer synonym verwendet werden, die Umrechnung erfolgt immer auf der Basis einer vorgegebenen mittleren Leistungsdichte nach Gl. 6.1, siehe hierzu auch Anhang D.

- Im einfachsten Fall kann die Reaktivität als eine lineare Funktion des Abbrands $\rho_\infty(B) = \rho_0 - A \cdot B$ definiert werden.² Diese Annahme vereinfacht die Bestimmung

²Bei der Beschreibung von ρ_∞ im Rahmen des linearen Reaktivitätsmodells wird der schnelle Reaktivitätsverlust zu Beginn der Bestrahlung durch den Aufbau der starken Neutronenabsorber Xenon und Samarium nicht berücksichtigt, d. h. der Wert für ρ_0 ergibt sich aus einer Extrapolation des linearen Reaktivitätsverlaufs nach Erreichen der Gleichgewichtskonzentration von Xenon und Samarium (typischerweise nach wenigen FPD) auf den Wert bei $t = 0$.

wesentlicher Größen, ist jedoch keine Voraussetzung für die Anwendung des hier beschriebenen linearen Reaktivitätsmodells.³ Während die Linearität der Reaktivitäts-Abbrand-Beziehung für Uran-Brennstoffe aber auch noch für MOX-Brennstoffe sehr gut erfüllt ist (siehe bspw. Abschnitt 6.2), ist dies für uranfreie Brennstoffe insbesondere bei der Verwendung von brennbaren Neutronengiften keine gute Näherung mehr (siehe Kapitel 9). Prinzipiell könnte $\rho_\infty(B)$ durch beliebige Funktionen beschrieben werden, im Rahmen dieser Arbeit werden jedoch praktisch ausschließlich Polynome bis zur vierten Ordnung in B zur Beschreibung von $\rho_\infty(B)$ verwendet.

- Zur Gesamtreaktivität eines Reaktorkerns tragen alle Brennelemente zu gleichen Teilen bei (Linearität der Gesamtreaktivität). Insbesondere gilt dann für einen Kern, welcher während eines Zyklus der Dauer t_{cycle} aus n Chargen eines Brennstoffs bei verschiedenen Abbränden besteht (Batch-Betrieb),⁴ dass sich die Gesamtreaktivität $\rho_{av}(t)$ bestimmt zu:

$$\rho_{av}(t) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \rho_\infty(t + (i-1) \cdot t_{cycle}), \quad t \in [0, t_{cycle}]. \quad (6.2)$$

- Der jeweils maximal erreichbare Abbrand ist zunächst durch die Bedingung gegeben, dass die Reaktivität im Reaktor stets größer als Null sein muss: $\rho_{av}(t) > 0$, $t \in [0, t_{cycle}]$.⁵ Beim Ende des Zyklus ist die Bor-Konzentration im Kühlmittel auf Null reduziert. Bei der Berechnung des erreichbaren Abbrands anhand der mittleren Reaktivität nach Gl. 6.2 muss daher für ρ_∞ die Reaktivität ohne Bor im Kühlmittel zugrunde gelegt werden.

Mit diesen Annahmen lassen sich unmittelbar wesentliche Größen bestimmen, für eine detaillierte Herleitung dieser einfachen Beziehungen siehe insbesondere Driscoll et al. (1990, Kapitel 1.3). So folgt für den maximalen Ein-Zyklus-Abbrand B_1 , welcher für einen Brennstoff in einem einzigen Zyklus (ohne eine Mischung frischer und teilabgebrannter Brennelemente) erreicht werden könnte:

$$B_1 = \frac{\rho_0}{A}.$$

Ist ein Reaktorkern aus n Chargen aus teilabgebrannten Brennelementen zusammengesetzt, so dass ein Brennelement vor seiner Entladung n Zyklen im Kern bestrahlt wird, so ergibt sich für den maximalen Entladeabbrand B_d :

$$B_d = \frac{2n}{n+1} \cdot B_1 = \frac{2n}{n+1} \cdot \frac{\rho_0}{A}.$$

Der erreichbare Abbrand ist in diesem einfachen Fall (linearer Verlauf der Reaktivität ρ_∞) also zunächst proportional zum Ein-Zyklus-Abbrand B_1 und damit zur anfänglich

³Vielmehr bezieht sich die Linearität auf die Bestimmung der mittleren Reaktivität (s. u.).

⁴Der n -te Batch weist zu Beginn eines Zyklus bereits eine Bestrahlungsdauer von $(n-1) \cdot t_{cycle}$ auf.

⁵Bei Berücksichtigung der Leckage von Neutronen aus dem Kern muss noch eine höhere Reaktivität erreicht werden, s. u.

vorhandenen Überschussreaktivität ρ_0 und umgekehrt proportional zur Rate des Reaktivitätsabbaus A . Weiterhin nimmt der erreichbare Abbrand mit der Zahl der Zyklen n zu, allerdings ist bereits nach wenigen Zyklen der zusätzliche Gewinn nur noch sehr gering (siehe Tabelle 6.1). Da jeder Zyklus mit einer Umladung des Reaktorkerns und damit einer Betriebsunterbrechung einher geht, soll die Zahl der Zyklen möglichst gering gehalten werden, um die Anlagenverfügbarkeit zu optimieren. Aus der möglichen Zunahme des Abbrands und den Verlusten für die Anlagenverfügbarkeit ergibt sich typischerweise, dass ein Brennelement maximal über drei oder vier Zyklen eingesetzt wird.

n	$c(n) = \frac{B_d(n)}{B_1}$	$\frac{c(n)-c(n-1)}{c(n-1)} [\%]$	$\frac{c(n)}{c(\infty)} [\%]$
1	1	n. A.	50,0
2	1,25	25,0	62,5
3	1,5	20,0	75,0
4	1,6	6,7	80,0
5	1,67	4,0	83,3
\vdots			
∞	2	0	100

Tabelle 6.1: Verhältnis $c(n)$ des erreichbaren Entladeabbrands $B_d(n)$ zum Ein-Zyklus-Abbrand B_1 . In der dritten Spalte ist die relative Erhöhung des Entladeabbrands bei n Zyklen zum Entladeabbrand bei $n - 1$ Zyklen angegeben. In der letzten Spalte ist das Verhältnis des bei n Zyklen erreichbaren Entladeabbrands zum maximal erreichbaren Abbrand $c(\infty)$ angegeben.

Schließlich ist im Rahmen des linearen Reaktivitätsmodells noch eine Abschätzung der Auswirkung des Mehrzyklen-Betriebs auf die benötigte Bor-Konzentration im Kühlmittel zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität möglich.⁶ Die Anfangsreaktivität eines Reaktorkerns aus n Chargen ergibt sich bei Beginn eines Zyklus (BOC) zu:

$$\rho_{av}(BOC) = \frac{2}{n+1} \cdot \rho_0,$$

d. h. mit zunehmendem n wird die im frischen Brennstoff vorhandene Überschussreaktivität durch im Kern vorhandene teilabgebrannte Brennelemente mit geringerer und sogar negativer Reaktivität kompensiert, es wird weniger Bor zur Reaktivitätskontrolle benötigt. Auch hier ist die relative Abnahme der Anfangsreaktivität für kleine Werte von n am größten.

Insgesamt wird durch eine Mischung verschieden stark abgebrannter Brennelemente im Kern also einerseits erreicht, dass der Ein-Zyklus-Abbrand des frischen Brennstoffs überschritten, d. h. bei gleicher Anfangsanreicherung bzw. -plutoniumkonzentration ein höherer Abbrand erzielt werden kann. Andererseits wird durch die Mischung auch der Bedarf für Neutronenabsorber zu Beginn eines Zyklus reduziert, da bereits teilabgebrannte Brennelemente mit negativer Reaktivität zur Reduzierung der Gesamtreaktivität beitragen.

⁶Für eine ausführliche Diskussion siehe Kapitel 8.

6.1.2 Korrekturen aufgrund von Neutronenverlusten durch Leckage

Bislang wurde zur Bestimmung des Abbrands die Reaktivität ρ_∞ für eine unendliche Anordnung des Brennstoffgitters (Zellrechnung) verwendet. Im Folgenden soll abgeschätzt werden, welche Verluste aufgrund von Neutronenleckage in einem typischen Leichtwasserreaktor (LWR) zu erwarten sind.

Für einen typischen LWR mit einer Leistung von einem GWe lässt sich der durch Neutronenverluste aufgrund von Leckage zu erwartende Reaktivitätsverlust näherungsweise abschätzen (siehe hierzu Anhang E). Es ergibt sich ein typischer Wert von

$$\Delta\rho_L = 0,03, \quad (6.3)$$

d. h. ca. 3% der Gesamtreaktivität gehen durch Leckage verloren. Dieser Wert ist zwar gering im Vergleich zur typischen Überschussreaktivität eines frischen Brennstoffs (im Bereich von 25–40%), aber nicht mehr im Vergleich zur mittleren Reaktivität im Mehr-Zyklen-Betrieb. Die Verluste durch Neutronenleckage müssen daher von der mittleren Reaktivität abgezogen werden, um realistische Werte für den erreichbaren Abbrand bestimmen zu können.

Da die durch Leckage bedingten Verluste von der Größe, Geometrie und dem Beladeschema eines Reaktorkerns abhängen, führt die Verwendung eines einheitlichen Werts für die Leckageverluste wiederum zu Unsicherheiten hinsichtlich des erreichbaren Entladeabbrands.⁷ Für die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommenen Untersuchungen ist jedoch im wesentlichen der Vergleich verschiedener Brennstoffe bei ansonsten gleicher Einsatzstrategie von Interesse. Es muss daher davon ausgegangen werden, dass die im Rahmen des linearen Reaktivitätsmodells erzielten Aussagen systematische Unsicherheiten aufweisen können, diese jedoch für verschiedene Brennstoff-Typen (sofern sie ansonsten gleich eingesetzt werden können) zu ähnlichen Differenzen führen und somit eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse für verschiedene Brennstoffe erhalten bleibt.

6.1.3 Bestimmung des erreichbaren Entladeabbrands B_d aus $\rho_\infty(B)$

Das lineare Reaktivitätsmodell lässt sich für die Untersuchung von IMF auch auf den Fall eines nichtlinearen Reaktivitätsverlaufs ausweiten. Dabei bleiben alle wesentlichen Annahmen erhalten, lediglich der Verlauf der Reaktivität über dem Abbrand wird nun nicht mehr nur linear, sondern als ein Polynom n-ter Ordnung beschrieben. Bei den hier durchgeführten Untersuchungen wurde $\rho_\infty(B)$ maximal durch ein Polynom 4. Ordnung angenähert:

⁷Nach Emendörfer und Höcker (1993) ergibt sich bspw. für die Konvoi-Kernkraftwerke Isar 2 und Neckar 2 aufgrund von unterschiedlichen Beladestrategien (Außen- versus Innenbeladung) eine Differenz in der erreichten Zykluslänge von 397 versus 432 FPD, also ein Gewinn durch die Innenbeladung von fast 9% im Vergleich zur Außenbeladung mit höherer Leckage.

$$\rho_{\infty}(B) = \rho_0 - \sum_{i=1}^4 A_i \cdot B^i.$$

Eine Anpassung an die mit MCMATH zu verschiedenen Abbrandzeitpunkten B^k bestimmten Reaktivitäten erfolgt in *Mathematica* mittels der Funktion

$$\text{Fit}[\text{Table}[\rho_{\infty}(B^k), \{\mathbf{k}, \text{steps}\}], \text{Table}[B^i, \{\mathbf{i}, 0, 4\}], B]$$

durch einen Least-square-fit.

Die Bestimmung des Zyklusabbrands und damit des erreichbaren Entladeabbrands kann bei Verwendung von Polynomen genau wie im linearen Fall analytisch erfolgen. Im Rahmen dieser Arbeit wird jedoch der erreichbare Entladeabbrand direkt in *Mathematica* bestimmt (s. u.), wodurch auch kompliziertere Funktionen zur Beschreibung des Verlaufs von $\rho_{\infty}(B)$ möglich sind.

In Gl. 6.2 ist der eben bestimmte Reaktivitätsverlust durch Neutronenleckage noch nicht berücksichtigt. Für die Bestimmung des maximalen Zyklusabbrands muss dieser Reaktivitätsverlust von der mittleren Reaktivität abgezogen werden:

$$\begin{aligned} \rho_{av}^L(t) &= \rho_{av}(t) - \Delta\rho_L \\ &= \frac{1}{n} \left(\sum_{i=1}^n \rho_{\infty}(t + (i-1) \cdot t_{cycle}) \right) - \Delta\rho_L, \quad t \in [0, t_{cycle}]. \end{aligned} \quad (6.4)$$

Die maximal erreichbare Zykluslänge $t_{cycle,max}$ für einen Brennstoff mit vorgegebenem Reaktivitätsverlauf $\rho_{\infty}(t)$ ergibt sich dann aus der Bedingung

$$\begin{aligned} 0 &\stackrel{!}{=} \rho_{av}^L(t = t_{cycle,max}) \\ &= \rho_{av}(t_{cycle,max}) - \Delta\rho_L \end{aligned} \quad (6.5)$$

und damit aufgrund von Gl. 6.3

$$\rho_{av}(t_{cycle,max}) = \Delta\rho_L = 0,03. \quad (6.6)$$

Mit diesen Funktionen wird in *Mathematica* nach Gl. 6.2 unmittelbar die mittlere Reaktivität $\rho_{av}(t)$ bestimmt. Dabei geht als ein Parameter die angenommenen Zykluslänge t_{cycle} ein. Damit kann die mittlere Reaktivität am Ende eines Zyklus $\rho_{av}(t = t_{cycle})$ als eine Funktion der gewählten Zykluslänge t_{cycle} verstanden werden.

Die maximal erreichbare Zykluslänge $t_{cycle,max}$ folgt dann nach Gl. 6.6 aus der Bedingung, dass $\rho_{av}(t_{cycle,max})$ gleich dem angenommenen Neutronenverlust durch Leckage $\Delta\rho_L$ ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde wie oben begründet für $\Delta\rho_L$ ein Wert von 0,03 angenommen. Numerische Werte für die erreichbare Zykluslänge $t_{cycle,max}$ können dann in *Mathematica* mittels der Funktion:

$$\text{FindRoot}[\Delta\rho_L = \frac{1}{n} (\sum_{i=1}^n \rho_{\infty}(i \cdot t_{cycle,max})), \{t_{cycle,max}, t_0\}]$$

bestimmt werden. Diese findet eine Lösung der Gleichung für $t_{cycle,max}$ ausgehend von einem vorgegebenen Startwert t_0 .⁸

Als letzter verbleibender Parameter tritt hierbei noch die Anzahl der Zyklen n auf, über die ein untersuchter Brennstoff bestrahlt werden soll. Wie bereits in Zusammenhang mit Tabelle 6.1 diskutiert, stellt eine Bestrahlung über drei oder vier Zyklen einen guten Kompromiss zwischen dem erreichbaren Zielabbrand und der Notwendigkeit von Betriebsunterbrechungen zur Umladung eines Reaktors dar. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher davon ausgegangen, dass die zu untersuchenden Brennstoffe über $n = 3$ oder $n = 4$ Zyklen bestrahlt werden.

Weiterhin können im Prinzip mittels des linearen Reaktivitätsmodells beliebige Zielabbrände untersucht werden. Um die Zahl von zu vergleichenden Brennstoffen nicht zu groß werden zu lassen, sollen im Rahmen dieser Arbeit zwei Zielabbrände zur Untersuchung der verschiedenen Brennstoff-Typen vorgegeben werden. Wie oben begründet wird für alle Brennstoffe der Abbrand bis zu einem Maximum von 50 MWd/kg(HM) berechnet. Dieser Abbrand wird daher als ein Zielabbrand für die folgenden Untersuchungen vorgegeben. Für die klassischen Uran-Brennstoffe waren in der Vergangenheit jedoch Abbrände von ca. 33 MWd/kg(HM) üblich, entsprechend zwei Dritteln des vorgegebenen maximalen Abbrands. Da davon ausgegangen werden muss, dass neuartige Brennstoffe zumindest vorübergehend mit moderaten Abbränden eingesetzt werden würden, soll daher auch ein solcher Abbrand als Referenz untersucht werden. Da im Rahmen dieser Arbeit uranfreie Brennstoffe mit unterschiedlichem Anfangsinventar an Plutonium untersucht werden sollen, ist die Angabe des Abbrands bezogen auf den anfänglichen Schwermetallgehalt des Brennstoffs nicht sinnvoll. Wie in Anhang D diskutiert entsprechen die gerade definierten Zielabbrände Werten von 300 kWd/cm³ bzw. 450 kWd/cm³. Diese werden den folgenden Diskussionen zugrundegelegt.

6.2 Exemplarische Darstellung von Ergebnissen des linearen Reaktivitätsmodells am Beispiel von Uran-Brennstoffen

Im folgenden Abschnitt soll das eben beschriebene Verfahren zur Bestimmung des erreichbaren Entladeabbrands und der mittleren Anfangsreaktivität am Beispiel von konventionellen Uran-Brennstoffen (UO₂) demonstriert werden. Zu diesem Zweck wurden mit MCMATH Abbrandrechnungen für Uran-Brennstoffe mit unterschiedlicher Anfangsanreicherung durchgeführt.

Als Anreicherungen wurden Werte zwischen 2,6% und 6,0% in Schritten von 0,2% untersucht. Für die Berechnung des Abbrands mit MCMATH wurden MCNP-Rechnungen bei BOL, bei 5 Tagen Abbrand (zur Erreichung einer Gleichgewichtskonzentration von Xe-

⁸Der maximal erreichbare Entladeabbrand B_d ist nach Gl. 6.1 proportional zur erreichten Bestrahlungsdauer, so dass sich ergibt: $B_d = n \cdot p \cdot t_{cycle,max}$.

non) und bei Abbränden in Schritten von 45 kWd/cm^3 (entsprechend 5 MWd/kg(HM)) durchgeführt. Bei der Bestimmung des Abbrands wurde dabei, wie in Kapitel 4.2.3 beschrieben, zunächst mit einer mittleren Bor-Konzentration von 500 ppm im Kühlmittel gerechnet. Für die so ermittelten Brennstoffzusammensetzungen wurde in einem zweiten Schritt mittels MCNP die Reaktivität ohne Bor im Kühlmittel bestimmt. Dies ist, wie oben beschrieben, für die Bestimmung des erreichbaren Abbrands im Rahmen des linearen Reaktivitätsmodells notwendig, da sich der erreichbare Abbrand aus der mittleren Reaktivität am Ende eines Zyklus ergibt, wenn die Bor-Konzentration im Kühlmittel auf Null reduziert wurde (für eine Diskussion der Reaktivitätskontrolle mit Bor siehe Kapitel 8).

6.2.1 Reaktivitätsverlauf für Uran-Brennstoffe

In Abb. 6.1 ist der Multiplikationsfaktor k_∞ für konventionelle Uran-Brennstoffe mit unterschiedlicher Anfangsanreicherung dargestellt. Dabei ist bei den berechneten Werten zu BOL bereits ein Xe-Gleichgewicht angenommen.⁹ Die eingetragenen statistischen Fehler von k_∞ sind kleiner 0,002 (zwei σ).

Es ist erkennbar, dass k_∞ für alle Anreicherungen in der ersten Hälfte des Abbrands stärker abnimmt als in der Zweiten. Die Werte von $k_\infty(\text{BOL})$ nehmen mit steigender Anfangsanreicherung von 1,25 bei 2,6% Anreicherung bis auf über 1,4 bei 6,0% zu. Gut erkennbar ist ebenso, dass der Unterschied zwischen den Multiplikationsfaktoren der einzelnen Brennstoffe im Laufe des Abbrands praktisch konstant bleibt.

In Abb. 6.2 ist die entsprechende Reaktivität ρ_∞ für die untersuchten Uran-Brennstoffe dargestellt. Hier lässt sich gut der maximale Ein-Zyklus-Abbrand B_1 ablesen, er nimmt von ca. 200 kWd/cm^3 bei einer Anreicherung von 2,6% bis ca. 450 kWd/cm^3 bei einer Anreicherung von 5,6% zu. Weiterhin ist zu erkennen, dass $\rho_\infty(B)$ für geringere Anreicherungen etwas stärker abnimmt als für hohe. Dies ist darauf zurückzuführen, dass bei gleichem Abbrand ein geringerer relativer Anteil des anfänglich vorhandenen spaltbaren U-235 im Brennstoff verbraucht wird.

6.2.2 Erreichbarer Entladeabbrand B_d

In Abb. 6.3 ist die mittlere Reaktivität der Uran-Brennstoffe am Ende eines Zyklus $\rho_{av}(t_{cycle})$ in Abhängigkeit von der jeweiligen Zykluslänge t_{cycle} für einen Drei-Zyklus-Abbrand dargestellt. Es ergibt sich bei den hier betrachteten Uran-Brennstoffen auch für die gemittelte Reaktivität eine in guter Näherung lineare Abhängigkeit von der angenommenen Zykluslänge.

Die maximale Zykluslänge $t_{cycle,max}$ ergibt sich nach Gl. 6.6. In Abb. 6.4 ist der mittels

⁹Innerhalb der ersten Tage der Bestrahlung eines Brennstoffs kommt es zum schnellen Aufbau eines Gleichgewichts der Produktion von Xe-135 aus Spaltungen und dem Abbau dieses stark Neutronen absorbierenden Isotops durch Einfangsreaktionen. Bei einer Untersuchung des Reaktivitätsverhaltens des Brennstoffs kann dieser schnelle Abfall der Reaktivität bei BOC an dieser Stelle vernachlässigt werden.

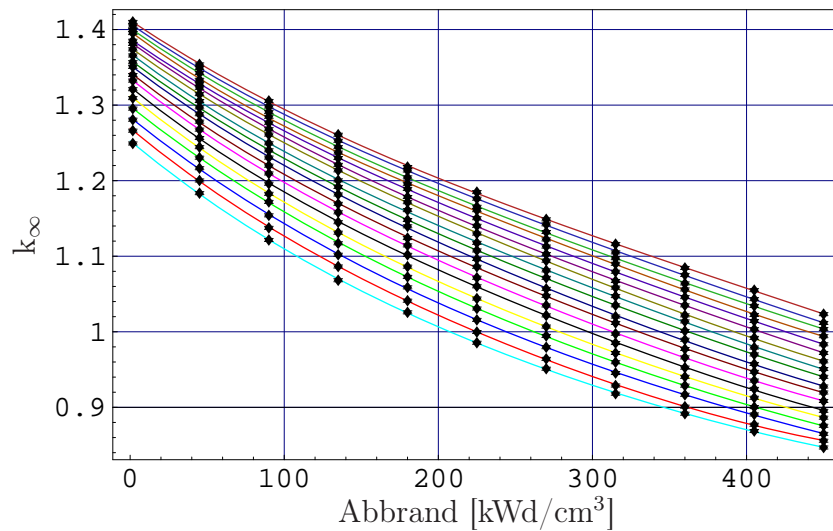


Abbildung 6.1: Entwicklung des Multiplikationsfaktors k_∞ in Abhängigkeit vom Abbrand für Uran-Brennstoffe mit einer anfänglichen U-235 Anreicherung von 2,6% (cyan, unterste Kurve) bis 6,0% (dunkelrot, oberste Kurve) in Schritten von 0,2%.

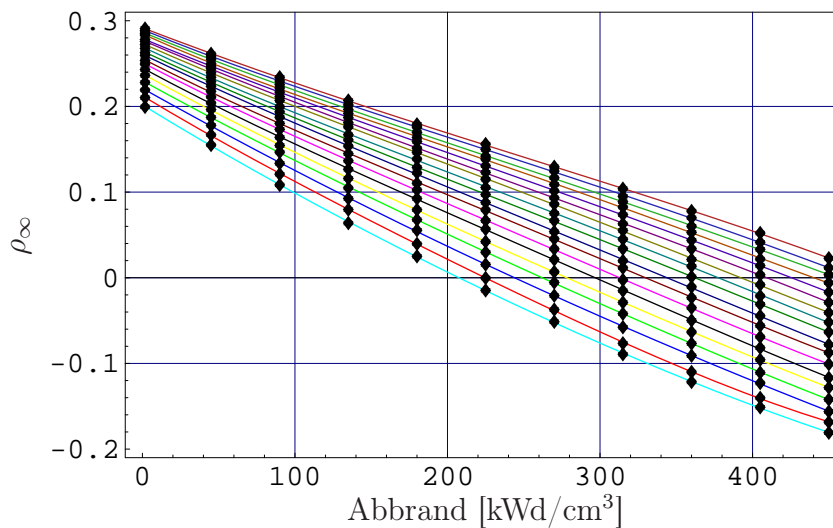


Abbildung 6.2: Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ in Abhängigkeit vom Abbrand für Uran-Brennstoffe mit einer anfänglichen U-235 Anreicherung von 2,6% (cyan, unterste Kurve) bis 6,0% (dunkelrot, oberste Kurve) in Schritten von 0,2%.

Mathematica bestimmte maximale erreichbare Abbrand $B_d = n \cdot p \cdot t_{cycle,max}$ in Abhängigkeit von der anfänglichen Uran-Anreicherung für einen drei bzw. vier Zyklen-Abbrand dargestellt. Für B_d ergibt sich in Abhängigkeit der Anfangsanreicherung x :

$$B_d(x) = 122,3 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 52,0 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 3$$

und

$$B_d(x) = 131,6 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 58,2 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 4.$$

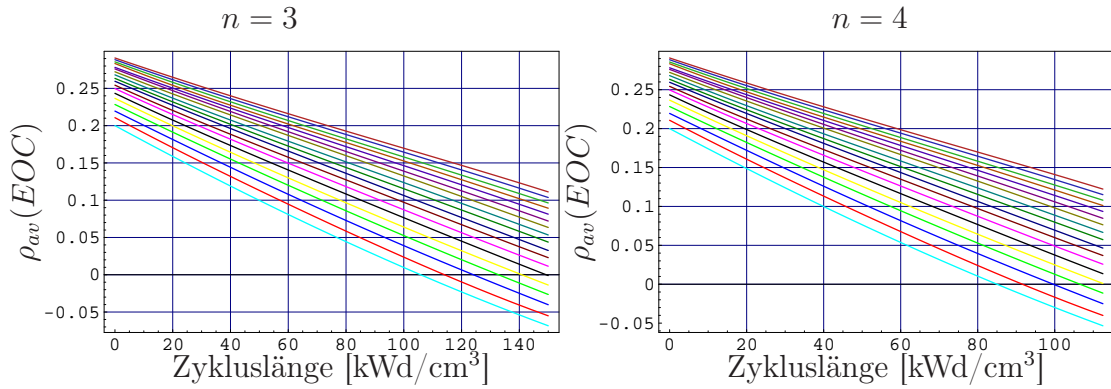


Abbildung 6.3: Mittlere Reaktivität am Ende eines Zyklus $\rho_{av}(t_{cycle})$ für Uran-Brennstoffe mit einer anfänglichen U-235 Anreicherung von 2,6% (cyan, unterste Kurve) – 6,0% (dunkelrot, oberste Kurve) in Schritten von 0,2% in Abhängigkeit von der Zykluslänge t_{cycle} für einen drei (links) bzw. vier Zyklen-Betrieb (rechts). Das Maximum der Zykluslänge von 150 MWd/cm³ bzw. 112,5 MWd/cm³ ergibt sich aus der Beschränkung des totalen Abbrands auf 450 MWd/cm³.

Mit steigender Anreicherung nimmt der erreichbare Abbrand von ca. 260 kWd/cm³ bzw. 280 kWd/cm³ bei 2,6% Anreicherung linear zu und erreicht bei ca. 4,11% bzw. 3,86% Anfangsanreicherung den Zielabbrand von 450 kWd/cm³. Ein Abbrand von 300 kWd/cm³ lässt sich bereits mit einer Anreicherung von 2,88% bzw. 2,72% erreichen. Für Brennstoffe mit höherer Anreicherung verbleibt zwar auch bei Erreichen des Zielabbrands von 450 kWd/cm³ noch eine ausreichende mittlere Reaktivität, so dass ein höherer Abbrand erzielt werden könnte (siehe Abb. 6.5), aufgrund der oben diskutierten Beschränkung des Abbrands wurden die Berechnungen jedoch bei 450 kWd/cm³ beendet.¹⁰

In Abb. 6.5 ist die bei Ende eines Zyklus verbleibende mittlere Reaktivität $\rho_{av}(EOC)$ für einen drei (bzw. vier) Zyklen-Abbrand abgebildet. Auch hier ist ersichtlich, dass für Brennstoffe bis zu einer Anreicherung von 4,11% bzw. 3,86% bei Annahme von $\Delta\rho_L = 0,03$ der Abbrand aufgrund der nicht mehr ausreichenden mittleren Reaktivität auf unter 450 kWd/cm³ beschränkt wird. Für Brennstoffe mit höherer Anreicherung verbleibt auch bei 450 kWd/cm³ Entladeabbrand noch eine höhere mittlere Reaktivität, bei einem Uran-Brennstoff von 6,0% Anfangsanreicherung würde die mittlere Reaktivität immer noch erheblich über 0,1 liegen.

In Abb. 6.6 ist schließlich nochmals der Verlauf der mittleren Reaktivität ρ_{av} während eines Zyklus mit der sich zur jeweiligen Anreicherung ergebenden optimierten Zykluslänge $t_{cycle,max}$ dargestellt. Man erkennt, dass für die Brennstoffe einer Anreicherung unter 4,2% bzw. 4,0% die mittlere Reaktivität ρ_{av} vom jeweiligen Anfangswert bis auf 0,03 bei der jeweiligen maximalen Zykluslänge abfällt, für Brennstoffe mit einer höheren Anreicherung ist auch bei 150 kWd/cm³ bzw. 112,5 kWd/cm³ Zyklusabbrand noch eine höhere

¹⁰Die Berechnung des Abbrands in MCMATH könnte natürlich über den maximalen vorgegebenen Abbrand hinaus ausgeführt werden. Aufgrund der damit verbundenen hohen Rechenzeit wurde darauf jedoch im Rahmen der hier vorgenommenen Untersuchung verzichtet.

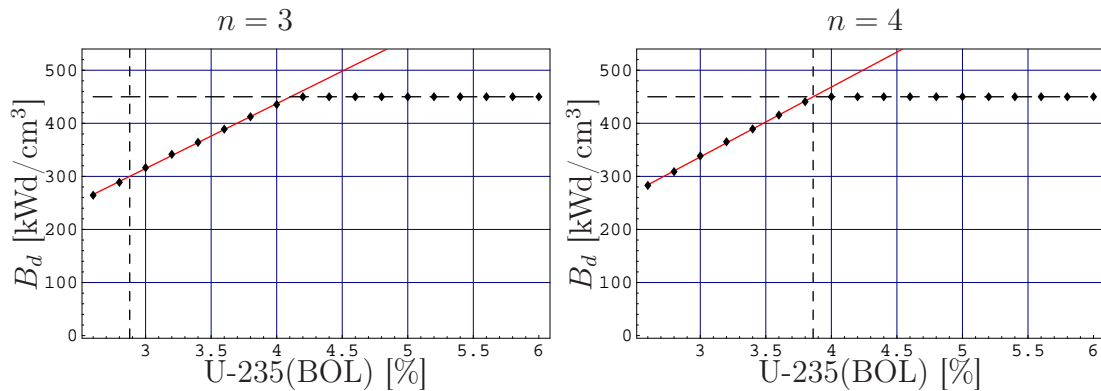


Abbildung 6.4: Erreichbarer Entladeabbbrand B_d für Uran-Brennstoffe mit einer Anfangsanreicherung von 2,6%–6,0%. Der jeweils erreichbare Abbbrand wurde für eine Bestrahlung über drei (links) bzw. vier Zyklen (rechts) bestimmt. Bei $n = 3$ ist die zum Erreichen des Zielabbbrands von 300 kWd/cm^3 benötigte Anreicherung durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet, bei $n = 4$ diejenige für einen Abbbrand von 450 kWd/cm^3 .

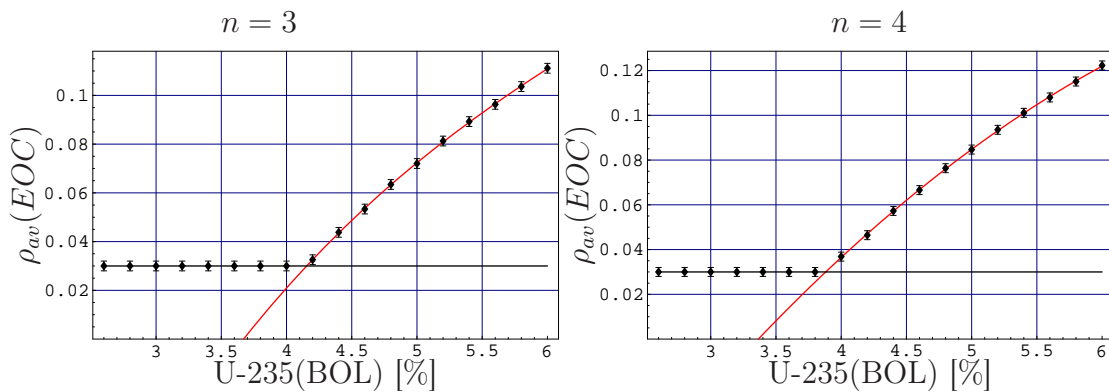


Abbildung 6.5: Reaktivität bei EOC für Uran-Brennstoffe mit unterschiedlicher Anfangsanreicherung für einen Abbbrand über drei (links) bzw. vier (rechts) Zyklen mit optimierter Zykluslänge.

Restreaktivität vorhanden. Ebenfalls gut zu erkennen ist, dass für die Brennstoffe mit geringer Anreicherung ($< 4,2\%$) die Unterschiede in der mittleren Reaktivität nicht so hoch sind wie bei höherer Anreicherung. Dies ist darauf zurückzuführen, dass für Brennstoffe mit zunehmender Anreicherung bis zum „Grenzwert“ von 4,2% bzw. 4,0% auch eine höhere Zykluslänge in die Bestimmung der mittleren Reaktivität nach Gl. 6.4 eingeht, für Brennstoffe von mehr als 4,2% Anfangsanreicherung jedoch immer der hier gewählte Maximalwert von 150 kWd/cm^3 bzw. 112,5 kWd/cm^3 .

6.2.3 Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$

Neben dem erreichbaren Abbbrand ist auch die mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ der Brennstoffe für die weitere Diskussion von Bedeutung. Diese bestimmt den Bedarf an

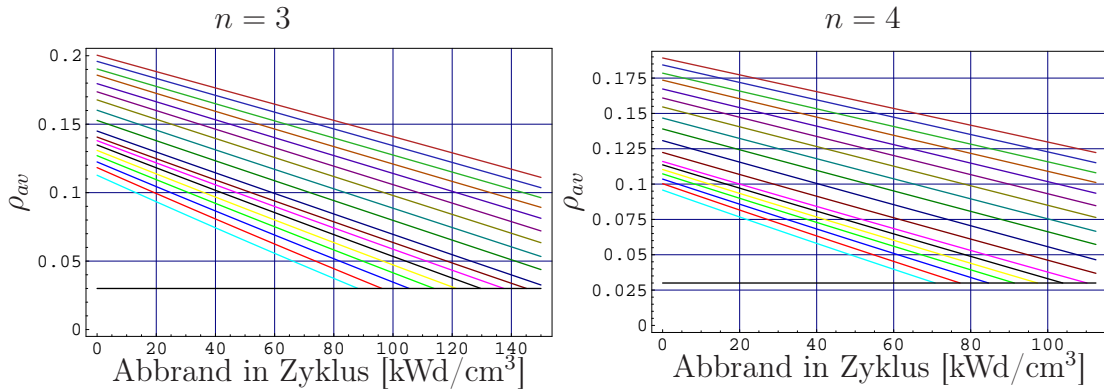


Abbildung 6.6: Entwicklung der mittleren Reaktivität ρ_{av} für Uran-Brennstoffe mit einer anfänglichen U-235 Anreicherung von 2,6% (cyan, unterste Kurve) – 6,0% (dunkelrot, oberste Kurve) in Schritten von 0,2% während eines Zyklus mit optimierter Zykluslänge $t_{cycle,max}$ für einen Abbrand über drei (links) bzw. vier Zyklen (rechts).

Bor im Kühlmittel, welches zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität benötigt wird (siehe hierzu die Diskussion in Kapitel 8). In Abb. 6.7 ist $\rho_{av}(BOC)$ für die hier betrachteten Uran-Brennstoffe für einen Abbrand über drei bzw. vier Zyklen mit optimierter Zykluslänge angegeben. Dabei wurde hier angenommen, dass mit $n = 3$ Zyklen ein Abbrand von 300 kWd/cm³ erreicht werden soll, für $n = 4$ demgegenüber ein Abbrand von 450 kWd/cm³.

Für $n = 3$ wird ein Zielabbrand von 300 kWd/cm³ bereits mit einer Anreicherung von ca. 2,9% erreicht (in der Abbildung durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet). Alle Brennstoffe mit höherer Anreicherung erzielen diesen Zielabbrand, die höhere Anfangsanreicherung führt daher zu einem gleichmäßigen Anstieg der mittleren Anfangsreaktivität, die auf den zusätzlichen U-235-Gehalt zurückzuführen ist.

Für $n = 4$ ist feststellbar, dass $\rho_{av}(BOC)$ mit zunehmender Anfangsanreicherung zunächst nur langsam ansteigt, da unterhalb von 3,9% Anreicherung zunächst nicht der Zielabbrand von 450 kWd/cm³ erreicht werden kann. Die höhere Anreicherung führt daher nicht direkt zu einer Steigerung der Anfangsreaktivität des Brennstoffs $\rho_{av}(BOC)$, sondern erhöht den jeweilig erreichbaren Abbrand bzw. die damit zusammenhängende Zykluslänge. Ab einer Anreicherung von über 3,9% wird jeweils die gleiche Zykluslänge von 150 kWd/cm³ erzielt, so dass $\rho_{av}(BOC)$ dann entsprechend der Zunahme von ρ_0 mit wachsender Anreicherung ansteigt.

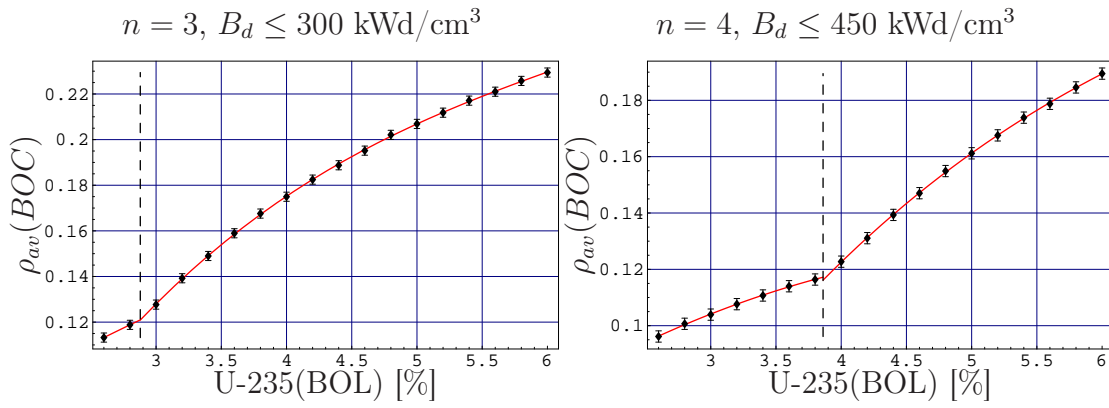


Abbildung 6.7: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(BOC)$ für Uran-Brennstoffe mit unterschiedlicher Anfangsanreicherung für einen 3-Zyklen Abbrand (links) und einen 4-Zyklen-Abbrand (rechts) mit optimierter Länge. Die gestrichelten Linien entsprechen der zum Erreichen des Zielabbrands notwendigen Pu-Konzentration.

Kapitel 7

Untersuchung von MOX und IMF

In diesem Kapitel werden zunächst konventionelle MOX-Brennstoffe untersucht, die gegenwärtig zum Umgang mit Plutonium-Beständen eingesetzt werden und daher als Standard-Brennstoffe angesehen werden können. Diese werden anschließend mit uranfreien Brennstoffen auf (Y,Zr)O₂-Basis verglichen, wie sie in Kapitel 2.5 eingeführt wurden. Beide Brennstoff-Typen, MOX und IMF, werden für zwei unterschiedliche Isotopenzusammensetzungen des anfänglich enthaltenen Plutoniums untersucht. Hierfür werden die Zusammensetzungen von RPu und WPu, wie sie in Tabelle 2.1 angegeben sind, zugrunde gelegt.

Ziel ist es, in diesem Kapitel Referenzbrennstoffe zu identifizieren, die dann im Folgenden noch genauer untersucht werden. Als freier Parameter dient dabei die anfängliche Plutoniumkonzentration. Untersucht wird zunächst, welcher Abbrand bei gegebener Konzentration unter den in Kapitel 6 gemachten Annahmen in einem Betrieb über drei bzw. vier Zyklen unter Beachtung von Reaktivitätsbeschränkungen erreichbar ist. Weiterhin wurden in Kapitel 6.1.3 zwei Zielabbrände von 300 bzw. 450 kWd/cm³ festgelegt. Damit können schließlich für jeden Brennstoff-Typ (MOX und IMF jeweils unter Verwendung von RPu und WPu) zwei Referenzbrennstoffe identifiziert werden, mit denen der jeweilige Zielabbrand (300 bzw. 450 kWd/cm³) bei vorgegebener Zyklenzahl (3 bzw. 4) erreicht werden kann.

Die so ermittelten Referenzbrennstoffe werden in späteren Kapiteln in Hinblick auf Sicherheitseigenschaften und Nichtverbreitungsaspekte ausführlicher diskutiert.

7.1 MOX-Brennstoffe

In diesem Abschnitt sollen nun zunächst klassische MOX-Brennstoffe diskutiert werden. Dabei wird zwischen Brennstoffen mit anfänglichem RPu-Inventar (im Folgenden mit MOXR abgekürzt) und solchen auf WPu-Basis (MOXW) unterschieden. Für die Brennstoffe wird eine einheitliche Brennstoffdichte von 9,0 g(HM)/cm³ zugrundegelegt.

In Abhängigkeit von der anfänglichen Pu-Isotopenzusammensetzung und dem sich daraus ergebenden Reaktivitätsverlauf wird zum Erreichen der Zielabbrände für MOXR und MOXW ein unterschiedlicher Pu-Anfangsgehalt benötigt. Bei MOXR werden daher zunächst Pu-Konzentrationen von 3,2% bis 6,0% Pu-fis untersucht. Dabei wird der Gehalt des Pu-fis in Schritten um jeweils 0,2% erhöht. Bei MOXW wird der Gehalt des Pu-fis von 2,6% bis 6,0% ebenfalls in Schritten von 0,2% variiert.

Zur Berechnung des Abbrands wird bei den MOX-Brennstoffen eine konstante Leistungsdichte von 38,3 W/g(HM) zugrundegelegt (OECD/NEA, 1995a, Appendix A). Alle sonstigen Parameter (Zellgeometrie, Moderatorichte, etc.) entsprechen den in Kapitel 4 eingeführten Standardwerten.

7.1.1 Reaktivitätsverlauf

In Abbildung 7.1 ist der Verlauf der Reaktivität ρ_∞ über den Abbrand für MOXR bzw. MOXW dargestellt.¹

Die Anfangsreaktivität ρ_0 der Brennstoffe liegt für MOXR zwischen etwa 0,14 und 0,17 und ist damit deutlich geringer als ρ_0 von Uran-Brennstoffen mit gleicher U-235 Anreicherung, welche Werte zwischen ca. 0,2 und 0,3 annimmt (siehe Abschnitt 6.2 und speziell Abbildung 6.2). Dies ist auf die hohe Neutronenabsorption in den geradzahigen Pu-Isotopen des RPu zurückzuführen, die im thermischen Neutronenspektrum nicht wesentlich zur Spaltung beitragen. Demgegenüber liegt ρ_0 für MOXW zwischen etwa 0,2 und 0,24. Auch für MOXW erreichen die Brennstoffe mit hohem anfänglichen Pu-Gehalt nicht die selbe Überschussreaktivität wie Uran-Brennstoffe mit vergleichbarer U-235-Anreicherung. Dies ist auf das mit höherem Pu-Gehalt zunehmend härter werdende Neutronenspektrum aufgrund der hohen Absorption der thermischen Neutronen durch das Plutonium zurückzuführen.

Es ergibt sich in guter Näherung sowohl für MOXR wie für MOXW ein über die gesamte Dauer des Abbrands linearer Reaktivitätsverlauf, ähnlich wie bei den Uran-Brennstoffen. Dabei beträgt der Reaktivitätsverlust bei MOXR etwa 40–50 pcm/(kWd·cm⁻³) und ist damit wesentlich geringer als bei klassischen Uran-Brennstoffen, wo er sich auf ca. 60–85 pcm/(kWd·cm⁻³) beläuft. Dies ist darauf zurückzuführen, dass zum einen die entstehenden Spaltprodukte, welche vorwiegend im thermischen Bereich Neutronen absorbieren, im härteren Neutronenspektrum der MOX-Brennstoffe einen geringeren Reaktivitätsverlust verursachen als bei Uran-Brennstoffen. Weiterhin sind die stark absorbierenden geradzahigen Pu-Isotope beim RPu-MOX-Brennstoff bereits nahezu im Gleichgewicht, d. h. ihre Neuproduktion aus Pu-239 bzw. Pu-241 und ihr Abbau durch Neutroneneinfang sind etwa vergleichbar, so dass ihre Konzentration nicht mehr so stark zunimmt wie im Uran-Brennstoff.

Für MOXW ergibt sich ein den Uran-Brennstoffen vergleichbarer Reaktivitätsverlust

¹Zu den Details des Berechnungsverfahrens siehe Kapitel 4 und 6. Die statistische Genauigkeit der MCNP-Berechnungen für die einzelnen Werte von ρ_∞ liegt bei 0,002 (zwei σ), siehe Abschnitt 4.4.5.

der bei 50–80 pcm/(kWd·cm⁻³) liegt. Dabei wird der etwas geringere Reaktivitätsverlust durch die geringfügig niedrigere Anfangsreaktivität ausgeglichen, so dass die WPU-Brennstoffe am Ende des Abbrands etwa vergleichbare Reaktivitäten wie die Uran-Brennstoffe gleicher Anreicherung aufweisen.

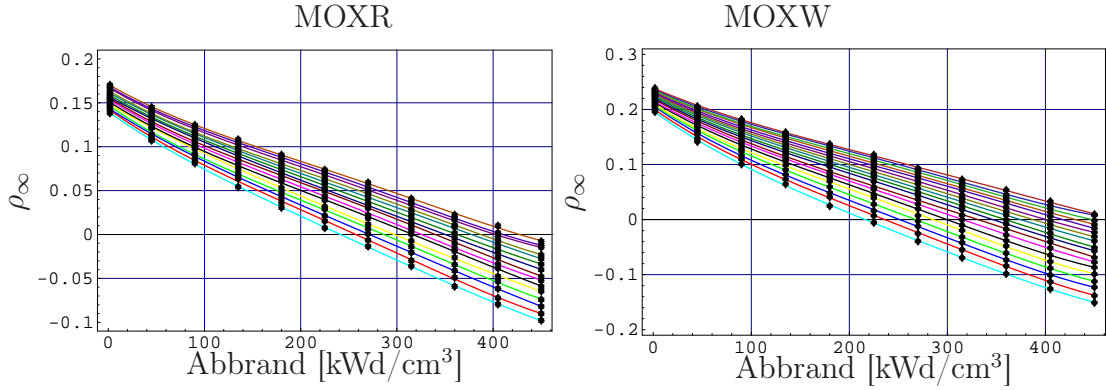


Abbildung 7.1: Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ in Abhängigkeit vom Abbrand für MOX-Brennstoffe mit einer anfänglichen RPU-Konzentration (MOXR, links) von 3,2% (cyan) – 6,0% Pu-fis (dunkelrot) und von 2,6% (cyan) – 6,0% Pu-fis (dunkelrot) für WPU-Brennstoffe (MOXW, rechts). Die verschiedenen Kurven entsprechen den unterschiedlichen Gehalten an Pu-fis in Schritten von jeweils 0,2%.

7.1.2 Erreichbarer Entladeabbrand B_d

In Abbildung 7.2 ist der erreichbare Entladeabbrand B_d in Abhängigkeit vom anfänglichen Gehalt des Pu-fis aufgetragen (vergleiche Kapitel 6). Da die Berechnung des Abbrands für alle Brennstoffe nur bis zu einem maximalen Abbrand von 450 kWd/cm³ durchgeführt wird, sind dabei lediglich diejenigen Werte berücksichtigt, für die sich ein möglicher Abbrand kleiner 450 kWd/cm³ ergibt (rote Gerade). Für alle Brennstoffe, deren Pu-Anfangsgehalt ausreicht, um den vorgegebenen Maximalwert von 450 kWd/cm³ zu erreichen, wird als maximal erreichbarer Entladeabbrand dieser Wert angenommen.

Für den erreichbaren Abbrand B_d in Abhängigkeit vom Gehalt des Pu-fis x ergibt sich damit für die MOXR-Brennstoffe

$$B_d(x) = 87,7 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 1,9 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 3 \quad (7.1)$$

und

$$B_d(x) = 94,4 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 4,7 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 4. \quad (7.2)$$

Die Werte für $x = 0\%$ verändern sich jeweils nur unwesentlich, die Steigung nimmt beim Übergang von drei auf vier Zyklen um 7,6% zu. Dies entspricht in guter Näherung den Ergebnissen, die sich nach dem linearen Reaktivitätsmodell erwarten lassen. Unter Vernachlässigung der Neutronenverluste durch Leckage beträgt die im Rahmen des linearen Reaktivitätsmodells theoretisch bestimmte Zunahme des maximalen Abbrands B_d 6,7% beim Übergang von $n = 3$ auf $n = 4$ (siehe Tabelle 6.1).

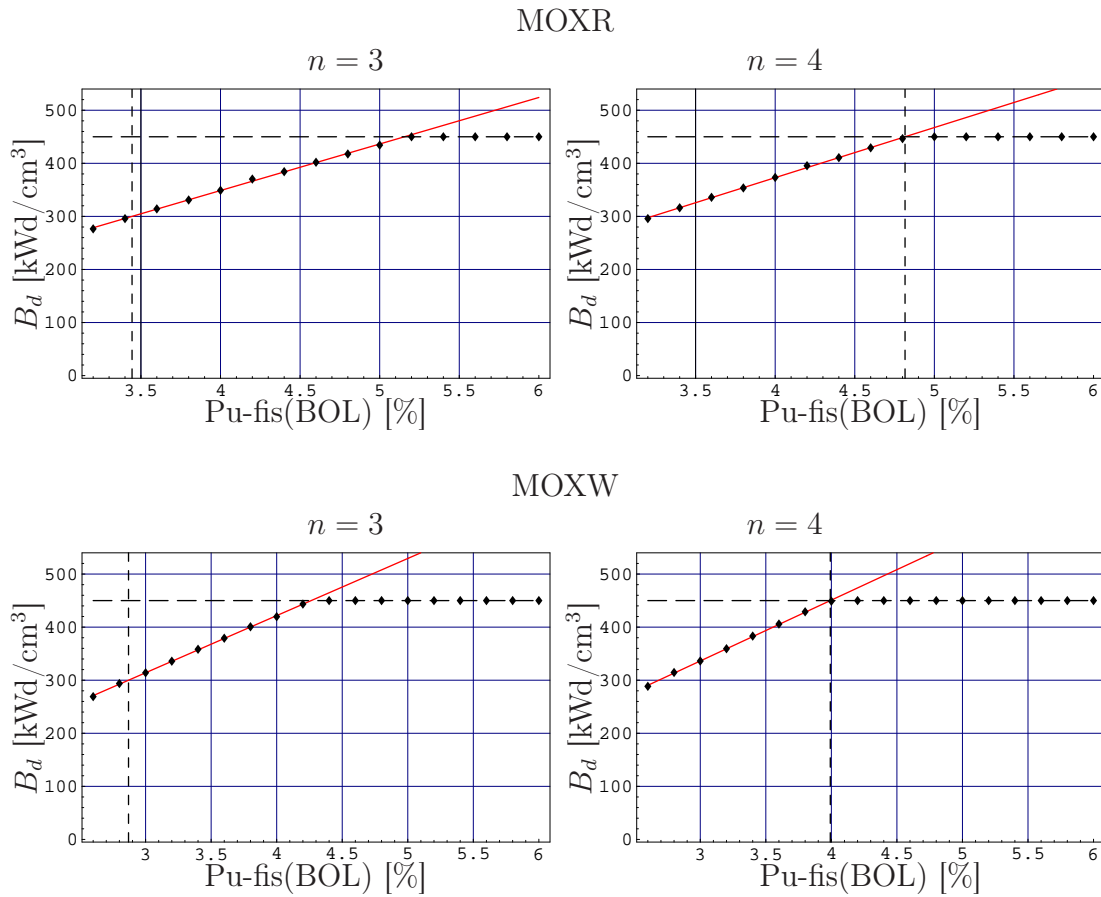


Abbildung 7.2: Erreichbarer Entladeabbbrand B_d für MOX-Brennstoffe in Abhängigkeit vom anfänglichen Pu-Gehalt für MOXR (oben) bzw. MOXW (unten). Der jeweils erreichbare Abbbrand ist für eine Bestrahlung über drei (links) bzw. vier Zyklen (rechts) bestimmt.

Anhand von Gl. 7.1 und 7.2 errechnet sich für MOXR bei $n = 3$ ein Zielabbbrand von 300 kWd/cm^3 für einen Gehalt des Pu-fis von $3,44\%$, für einen Zielabbbrand von 450 kWd/cm^3 ist bei $n = 4$ ein Gehalt des Pu-fis von $4,82\%$ notwendig.

Für MOXW ergibt sich für den erreichbaren Entladeabbbrand

$$B_d(x) = 107,7 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 9,0 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 3 \quad (7.3)$$

und

$$B_d(x) = 114,7 \text{ kWd/cm}^3 \cdot x/\% - 7,9 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 4. \quad (7.4)$$

Auch hier entspricht die Zunahme der Steigung um $6,5\%$ sehr gut dem vom linearen Reaktivitätsmodell vorhergesagten Wert. Zum Erreichen eines Zielabbrands von 300 kWd/cm^3 ist für MOXW bei $n = 3$ damit ein Gehalt des Pu-fis von $2,87\%$, für 450 kWd/cm^3 bei $n = 4$ von $3,99\%$ notwendig. Eine Zusammenfassung der für einen bestimmten Zielabbbrand benötigten Pu-fis-Konzentrationen für die verschiedenen Brennstoff-Typen findet sich in Abschnitt 7.3 an Ende dieses Kapitels.

7.1.3 Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$

In Abbildung 7.3 ist die Abhängigkeit der mittleren Reaktivität für den Beginn eines Zyklus $\rho_{av}(\text{BOC})$ vom anfänglichen Gehalt des Pu-fis für die verschiedenen MOX-Brennstoff-Typen dargestellt. Dabei wird ein Abbrand über drei Zyklen bis 300 kWd/cm³ und über vier Zyklen bis 450 kWd/cm³ zugrundegelegt. Zur Berechnung von $\rho_{av}(\text{BOC})$ nach Gl. 6.2 wird für die verschiedenen Brennstoffe jeweils der oben bestimmte erreichbare Entladeabbrand B_d bzw., sofern der erreichbare Abbrand größer als der vorgegebene Zielabbrand ist, der jeweilige Zielabbrand als Entladeabbrand zugrundegelegt. Die so ermittelten Reaktivitäten sind in Abbildung 7.3 dargestellt.²

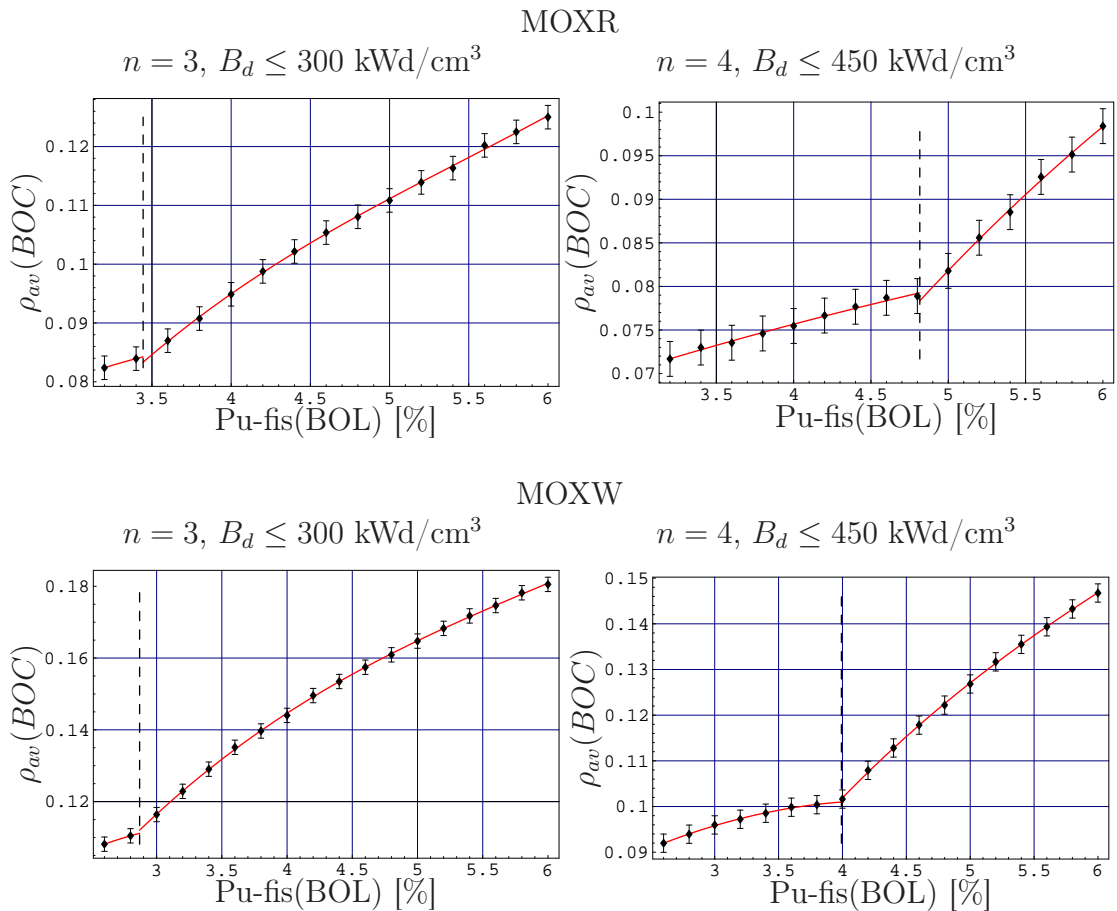


Abbildung 7.3: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ für MOXR (oben) bzw. MOXW (unten) in Abhängigkeit vom anfänglichen Gehalt des Pu-fis für einen Abbrand über drei Zyklen (links) und vier Zyklen (rechts) mit optimierter Zykluslänge. Die gestrichelten Linien entsprechen der zum Erreichen des Zielabbrands notwendigen Pu-Konzentration.

Wie im Fall von Uran-Brennstoff (siehe Kapitel 6.2.3) kann auch für die verschiedenen MOX-Brennstoffe bei der Abhängigkeit der Anfangsreaktivität vom anfänglichen Gehalt

²Dabei wird als Unsicherheit der statistische Fehler der k_∞ -Berechnungen in MCNP von 0,002 (zwei σ) angenommen.

des Pu-fis ein Bereich unterhalb und oberhalb der zum Erreichen des jeweiligen Zielabbrands notwendigen Minimalkonzentration unterschieden werden (in den Abbildungen ist diese Pu-Konzentration durch eine gestrichelte Linie angegeben).³ Da für $n = 3$ diese Konzentrationen bereits am unteren Ende des untersuchten Bereichs liegen, lässt sich diese Unterteilung hier jedoch nicht besonders gut erkennen. Bis zur jeweiligen Minimalkonzentration (4,82% für MOXR bzw. 3,99% für MOXW bei $n = 4$) führt eine Erhöhung des Gehalts an Pu-fis nur zu einem langsamen Anstieg der anfänglichen Reaktivität, da zunächst der erreichbare Abbrand und damit die erreichbare Zykluslänge zunimmt. Ab Erreichen der Minimalkonzentration steigt die Überschussreaktivität dann mit dem Gehalt an Pu-fis stark an. Grundsätzlich liegen die Werte der Anfangsreaktivität aufgrund der stärkeren Mittelung für eine Bestrahlung über vier Zyklen wie zu erwarten deutlich unter denjenigen einer Bestrahlung über drei Zyklen.

Weiterhin ist klar erkennbar, dass sich unabhängig vom gewählten Betrieb bei gleichem Gehalt an Pu-fis für MOXW eine höhere Anfangsreaktivität ergibt als für MOXR. Dies lässt sich auf die bereits oben festgestellten höheren Anfangsreaktivitäten bei MOXW zurückführen, die wiederum durch das Fehlen der stark Neutronen absorbierenden geradzahigen Pu-Isotope 240 bzw. 242 in WPu bedingt sind.

7.2 Uranfreie Brennstoffe (IMF)

Im Folgenden sollen nun uranfreie Brennstoffe (IMF) untersucht werden. Für die Berechnung dieser Brennstoffe wird die im Kapitel 2.5.1 eingeführte (Y,Zr)O₂-Matrix zugrundegelegt. Unabhängig von der untersuchten Pu-Anfangskonzentration wird für diese Matrix einheitlich eine Dichte von 5,0 g/cm³ angenommen.⁴ Auch hier werden Brennstoffe mit anfänglichem RPu- (RPu-IMF) bzw. WPu-Gehalt (WPu-IMF) unterschieden. Dabei werden für RPu-IMF Anfangskonzentrationen von 0,4–1,0 g/cm³ Gesamtplutonium, für WPu-IMF von 0,35–1,0 g/cm³ untersucht. Die unteren Grenzen entsprechen in etwa denjenigen der untersuchten MOX-Brennstoffe, die maximale untersuchte Pu-Konzentration wird jedoch höher als im MOX-Fall gewählt, da bei den IMF-Brennstoffen keine Neuproduktion von Pu durch Uran auftritt und daher — bei gleichem Spaltstoffverbrauch zum Erreichen des Zielabbrands — ein höherer Pu-Anfangsgehalt notwendig ist. Untersucht werden dabei Brennstoffe, deren Pu-Gehalt jeweils um 0,05 g/cm³ verschieden ist.⁵ Für die Untersuchung von IMF wird eine konstante Leistungsdichte von 360 W/cm³ zugrundegelegt.⁶

³Da die notwendige Pu-Konzentration aus dem Verlauf des erreichbaren Entladeabbrands B_d bestimmt wird, stimmt dieser Wert nicht unbedingt exakt mit dem Schnittpunkt der Kurven für die mittlere Anfangsreaktivität, wie sie in Abbildung 7.3 dargestellt sind, überein.

⁴Siehe Kapitel 2.5.1.

⁵Dies entspricht etwa dem doppelten Abstand der MOX-Brennstoffe, was dadurch begründet ist, dass bei der Untersuchung der IMF-Brennstoffe eine größere Bandbreite der Pu-Anfangskonzentrationen abgedeckt wird.

⁶Da diese Brennstoffe einen variierenden anfänglichen Schwermetallgehalt (Pu) aufweisen, wird hier die Leistungsdichte auf das Brennstoffvolumen, nicht auf den anfänglichen Schwermetallgehalt bezogen. Die bei der Berechnung der MOX-Brennstoffe zugrundegelegte Leistungsdichte von 38,3 W/g(HM) entspricht

7.2.1 Reaktivitätsverlauf bei IMF

Die Abbildung 7.4 gibt den Verlauf der Reaktivität ρ_∞ in Abhängigkeit vom Abbrand für RPu-IMF und WPu-IMF wieder. Auch hier werden die zu bestimmten Abbrandzeitpunkten mit MCNP berechneten Reaktivitäten (durch Punkte dargestellt) durch Polynome vierter Ordnung gefittet. Es werden dabei wesentliche Unterschiede im Reaktivitätsverlauf zwischen den MOX- und den IMF-Brennstoffen deutlich.

Sowohl für RPu-IMF wie für WPu-IMF ist die Reaktivität ρ_0 der Brennstoffe zu Beginn der Bestrahlung nur sehr schwach vom Pu-Anfangsgehalt abhängig, sie liegt für RPu-IMF zwischen 0,29 und 0,30, für WPu-IMF zwischen 0,36 und 0,38. Dies ist darauf zurückzuführen, dass zu Beginn des Abbrands in IMF praktisch nur das enthaltene Plutonium zur Neutronenabsorption beiträgt, während in MOX-Brennstoffen das enthaltene U-238 die Neutronenbilanz stark beeinflusst. In MOX ist daher die Anfangsreaktivität vom Verhältnis der Neutronenabsorption zwischen Uran und Plutonium und damit stark vom anfänglichen Pu-Gehalt abhängig. In IMF ist hingegen die Reaktivität fast vollständig durch das Verhältnis von Neutronenabsorption und -neuproduktion im Plutonium, und damit primär von der Pu-Isotopenzusammensetzung bestimmt.⁷

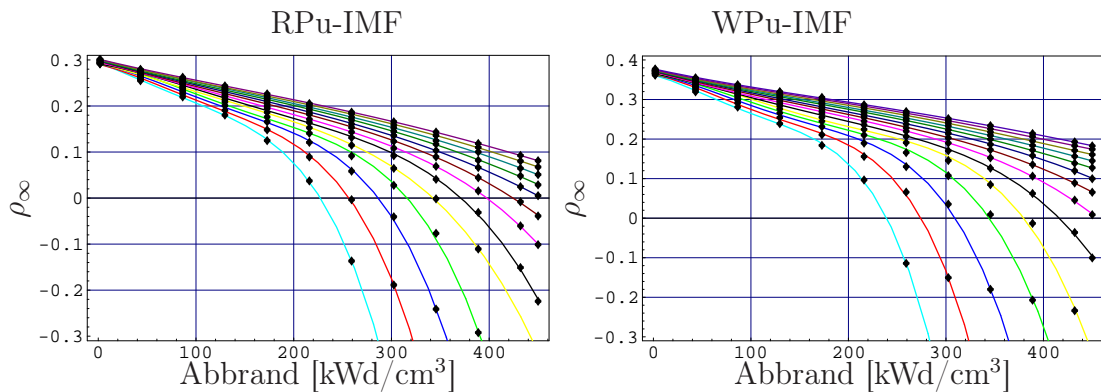


Abbildung 7.4: Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ in Abhängigkeit vom Abbrand für RPu-IMF mit einem anfänglichen Pu-Gehalt von 0,4 (cyan) – 1,0 g/cm³ (dunkelrot) bzw. WPu-IMF mit einem anfänglichen Pu-Gehalt von 0,35 (cyan) – 1,0 g/cm³ (dunkelrot). Die verschiedenen Kurven entsprechen den Pu-Gehalten in Schritten von 0,05 g/cm³.

Ein weiterer wesentlicher Unterschied in der Entwicklung der Reaktivität ist auf die Tatsache zurückzuführen, dass in IMF keine Pu-Neuproduktion aus Uran stattfindet. Damit wird während der Bestrahlung des Brennstoffs der Gesamtgehalt an Plutonium stärker verändert als bei MOX-Brennstoffen. Mit abnehmendem Pu-Gehalt und zunehmendem Anteil an geradzahligen Pu-Isotopen im verbleibenden Plutonium überwiegt dann schließlich die Neutronenabsorption im Verhältnis zur Spaltung. Damit nimmt die Reaktivität

344,7 W/cm³. Bei 360 W/cm³ entspricht der Zielabbrand von 450 kWd/cm³ einer Bestrahlung über 1250 FPD.

⁷Eine geringfügige Abhängigkeit von der Pu-Konzentration ergibt sich natürlich aus der Tatsache, dass auch die Matrix, die Strukturmaterialien und der Moderator einen Anteil an der Neutronenabsorption aufweisen.

sehr stark ab. Je nach anfänglichem Pu-Gehalt ergibt sich daher zu unterschiedlichen Abbrandzeitpunkten ein stark nicht-linearer Abfall der Reaktivität.

Dies drückt sich auch im mittleren Reaktivitätsverlust aus. Aus Gründen der Vergleichbarkeit wird hier der mittlere Reaktivitätsverlust herangezogen, der auf die Dauer des unten bestimmten maximal erreichbaren Entladeabbrands bezogen ist.⁸ Für beide Brennstoff-Typen liegt bei hohen Pu-Konzentrationen, die über den hier untersuchten Abbrandbereich einen in guter Näherung linearen Reaktivitätsverlauf aufweisen, der mittlere Reaktivitätsverlust bei 45–50 pcm/(kWd·cm³) und ist damit etwa demjenigen der MOX-Brennstoffe vergleichbar. Für niedrige Pu-Konzentrationen steigt der mittlere Reaktivitätsverlust auf Werte von ca. 200 pcm/(kWd·cm³) bei RPu-IMF und 250 pcm/(kWd·cm³) bei WPu-IMF und ist damit 2–3 mal so hoch wie bei vergleichbaren MOX-Brennstoffen.

7.2.2 Erreichbarer Entladeabbrand B_d

Trotz des ausgeprägt nicht-linearen Verhaltens des Reaktivitätsverlaufs ergibt sich für den erreichbaren Entladeabbrand ein in guter Näherung linearer Zusammenhang zum anfänglichen Pu-Gehalt. In Abbildung 7.5 ist der erreichbare Entladeabbrand B_d für einen drei bzw. vier Zyklen-Betrieb dargestellt.

Für den erreichbaren Abbrand B_d in Abhängigkeit vom Pu-Gehalt p ergibt sich damit für RPu-IMF:

$$B_d(p) = 686 \text{ kWd/cm}^3 \cdot p/(g \cdot \text{cm}^3) + 0,6 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 3 \quad (7.5)$$

und

$$B_d(p) = 699 \text{ kWd/cm}^3 \cdot p/(g \cdot \text{cm}^3) + 7,8 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 4. \quad (7.6)$$

Hierbei ist zunächst festzustellen, dass B_d im Falle von RPu-IMF deutlich schwächer von der Zahl der Zyklen n abhängt als dies bei den Uran- bzw. MOX-Brennstoffen der Fall ist. Die Steigung nimmt beim Übergang von $n = 3$ auf $n = 4$ lediglich um 1,9% zu.⁹ Dies ist eine Konsequenz aus dem sehr ausgeprägten Reaktivitätsverlust bei höheren Abbränden. Der durch eine Mittelung über vier Zyklen gewonnenen Reaktivität aus den ersten Zyklen steht ein wesentlich höherer Reaktivitätsverlust im letzten Zyklus gegenüber, so dass nur ein vergleichsweise geringer Gewinn an erreichbarem Entladeabbrand erzielt werden kann (vergleiche hierzu Abschnitt 7.1.2 und Tabelle 6.1).

Für WPu-IMF ergibt sich für B_d :

$$B_d(p) = 815 \text{ kWd/cm}^3 \cdot p/(g \cdot \text{cm}^3) + 0,9 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 3 \quad (7.7)$$

⁸Für den Fall eines linearen Reaktivitätsverlaufs wie bei Uran- und MOX-Brennstoffen ist der mittlere Verlust durch die Steigung der Reaktivität bestimmt, im nicht-linearen Fall wird an dieser Stelle der Quotient aus der Reaktivitätsdifferenz zwischen frischen und dem bis zum erreichbaren Entladeabbrand bestrahlten Brennstoff und der Bestrahlungsdauer zugrundegelegt.

⁹Der um 7,2 kWd/cm³ größere Wert für $p = 0 \text{ g/cm}^3$ bedeutet bei einem Zielabbrand von 300–450 kWd/cm³ einen etwa zwei Prozent erhöhten Entladeabbrand bei gleichem Pu-Gehalt.

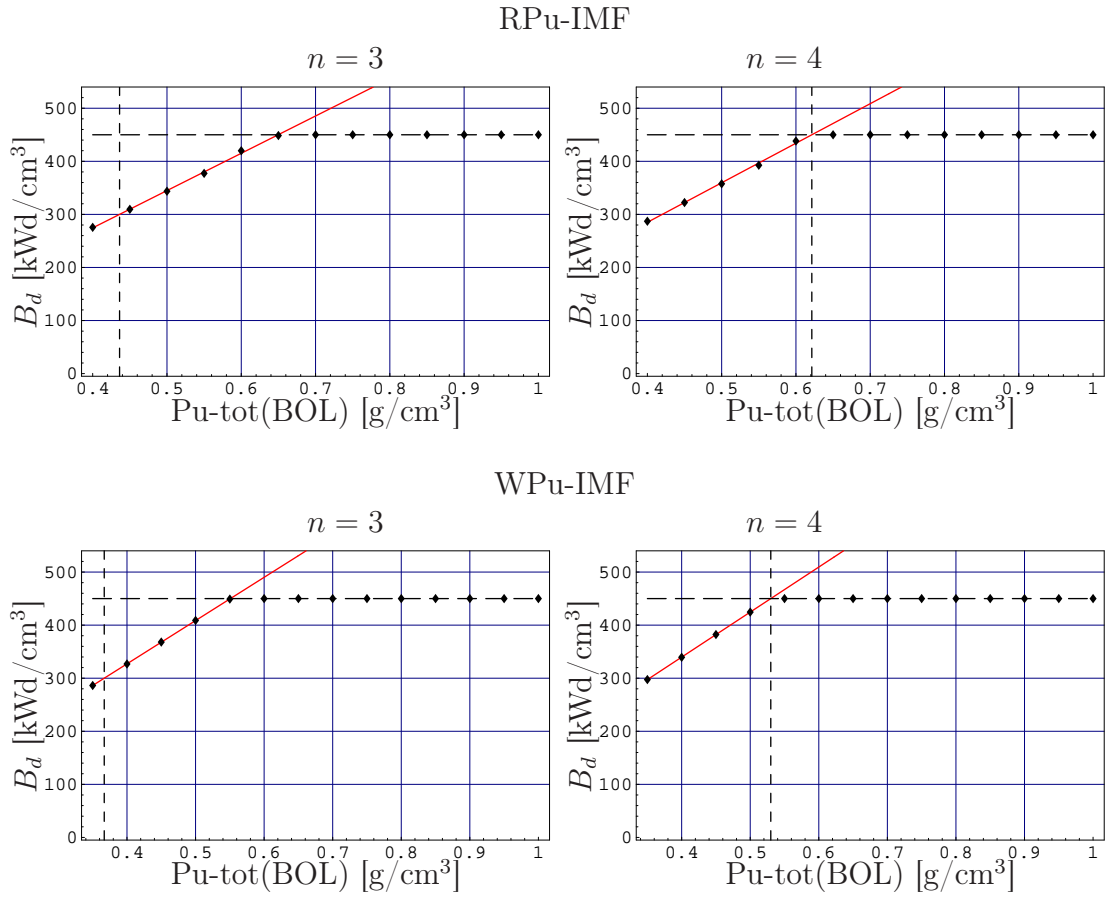


Abbildung 7.5: Erreichbarer Entladeabbrand B_d in Abhängigkeit vom anfänglichen Pu-Gehalt für RPu-IMF (oben) bzw. WPU-IMF (unten). Der jeweils erreichbare Abbbrand wird für eine Bestrahlung über drei (links) bzw. vier Zyklen (rechts) bestimmt.

und

$$B_d(p) = 849 \text{ kWd/cm}^3 \cdot p / (g \cdot \text{cm}^3) + 0,3 \text{ kWd/cm}^3 \quad \text{für } n = 4. \quad (7.8)$$

Auch hier ist eine geringere Abhängigkeit des erreichbaren Entladeabbrands von n als bei den MOX-Brennstoffen feststellbar, die Steigung nimmt um 4,1% zu. Um in einem drei Zyklen-Betrieb den Zielabbbrand von 300 kWd/cm^3 erreichen zu können ist nach Gl. 7.5 bis 7.8 ein RPu-Gehalt von $0,436 \text{ g/cm}^3$ bzw. ein WPU-Gehalt von $0,366 \text{ g/cm}^3$ notwendig, für den Zielabbbrand von 450 kWd/cm^3 bei $n = 4$ dagegen werden bei RPu-IMF $0,633 \text{ g/cm}^3$, bei WPU-IMF $0,530 \text{ g/cm}^3$ benötigt (siehe auch die Zusammenfassung in Tabelle 7.1).

7.2.3 Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$

In Abbildung 7.6 ist die mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ für die IMF-Brennstoffe dargestellt. Auch im Falle von IMF können zwei Bereiche des Pu-Gehalts unterschieden werden, derjenige bei dem der Zielabbbrand erreicht werden kann und derjenige, bei dem dies nicht der Fall ist (die zum Erreichen des Zielabbrands notwendige Konzentration ist

wieder durch eine gestrichelte Linie angedeutet).¹⁰

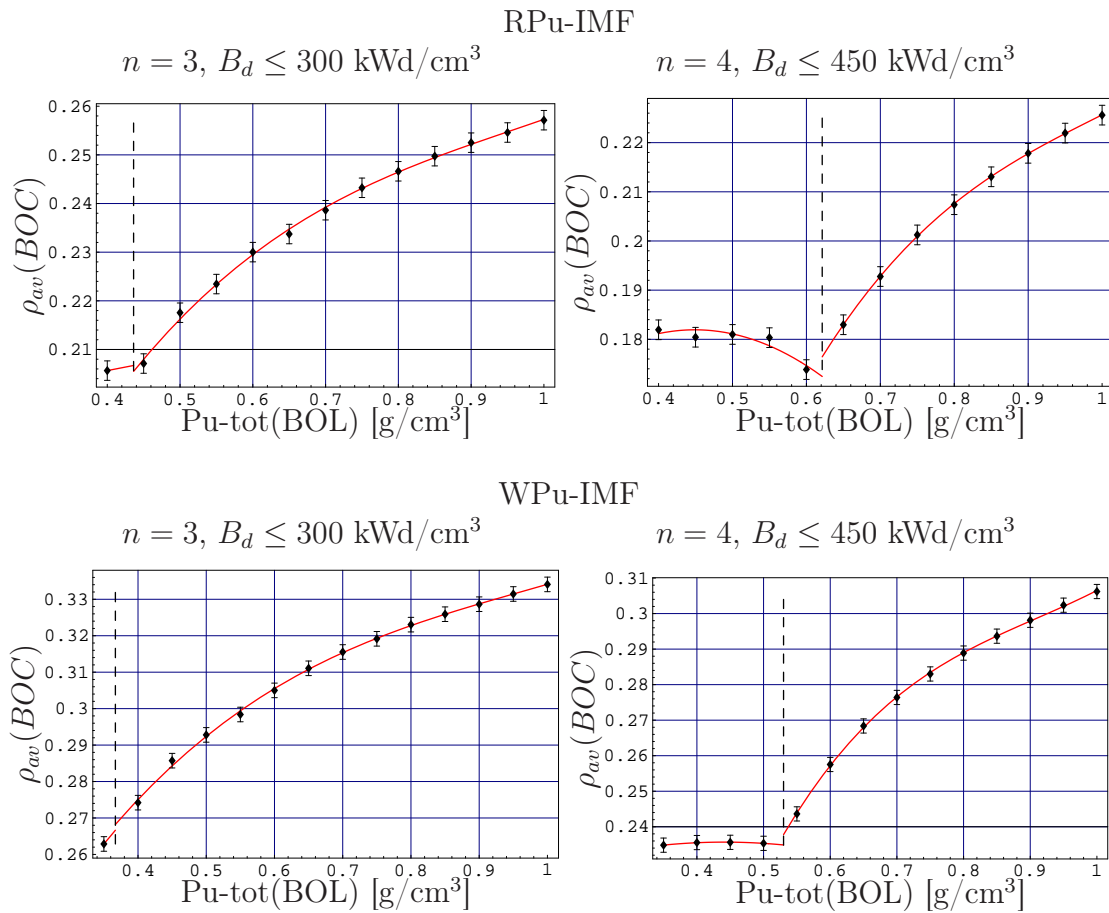


Abbildung 7.6: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ für RPu-IMF (oben) bzw. WPu-IMF (unten) in Abhängigkeit vom anfänglichen Pu-Gehalt für einen Abbrand über drei (links) bzw. vier Zyklen (rechts) mit optimierter Zykluslänge. Die gestrichelten Linien geben die zum Erreichen des jeweiligen Zielabbrands notwendige Pu-Konzentration an.

Aufgrund der sehr hohen Anfangsreaktivität bei den IMF-Brennstoffen ist auch die mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ bei IMF erheblich höher als bei MOX. Für RPu-IMF liegen die Werte zwischen 0,17 und 0,26. Damit ist $\rho_{av}(\text{BOC})$ etwa doppelt so hoch wie bei MOXR-Brennstoffen mit vergleichbarem Entladeabbrand. Noch größere Werte zwischen 0,23 und 0,33 ergeben sich für WPu-IMF. Diese liegen sogar etwa um einen Faktor 2,5 über den Ergebnissen für vergleichbare MOXW-Brennstoffe.

Beim Übergang von drei auf vier Zyklen reduziert sich $\rho_{av}(\text{BOC})$ deutlich, sowohl bei RPu- wie bei WPu-IMF beträgt die Differenz von $\rho_{av}(\text{BOC})$ bei gleicher Pu-Konzentration etwa 0,03–0,06 oder 10–30%. Zur Reduzierung von $\rho_{av}(\text{BOC})$ und damit dem zur Reaktivitätskontrolle notwendigen Bor-Bedarf ist also ein Übergang von einer Bestrahlung über drei Zyklen zu vier Zyklen nützlich.

¹⁰Siehe auch Fußnote 3 in diesem Kapitel.

7.3 Definition von Referenzbrennstoffen für MOX und IMF

Mit der oben bestimmten Abhängigkeit des erreichbaren Entladeabbrands B_d von der anfänglichen Anreicherung bzw. dem Plutoniumgehalt lassen sich nun für die verschiedenen Brennstoff-Typen die Anfangszusammensetzungen bestimmen, bei denen ein vorgegebener Zielabbrand mit einer gewählten Zahl von Zyklen n erreicht werden kann. Die möglichen Fälle sind für die oben eingeführten Zielabbrände von 300 bzw. 450 kWd/cm³ und $n = 3$ bzw. $n = 4$ Zyklen in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

Zielabbrand	300		450		[kWd/cm ³]
	3	4	3	4	Zyklen
Uran					
Uran	2,88	2,72	4,11	3,86	[%(U-235)]
RPu					
MOXR	3,44	3,23	5,16	4,82	[%(Pu-fis)]
RPu-IMF	0,436	0,418	0,655	0,633	[g(Pu-tot)/cm ³]
WPu					
MOXW	2,87	2,68	4,26	3,99	[%(Pu-fis)]
WPu-IMF	0,366	0,353	0,551	0,530	[g(Pu-tot)/cm ³]

Tabelle 7.1: Für das Erreichen eines vorgegebenen Zielabbrands notwendige Anfangsanreicherung bzw. Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit von der Zahl der gewählten Zyklen für die Brennstoff-Typen Uran, MOX und IMF.

Um die Zahl der zu untersuchenden Brennstoffe nicht zu groß zu wählen, wird für die weiteren Untersuchungen eine Beschränkung auf jeweils eine Zielabbrand-Zyklenzahl-Kombination vorgenommen. Dabei wird davon ausgegangen, dass ein typischer Beladerhythmus eines LWR im Jahres- bzw. 18 Monate-Zyklus angestrebt ist. Dann wird beim Übergang von einem Abbrand über drei auf vier Zyklen der erreichbare Zielabbrand entsprechend gesteigert. Im Folgenden werden daher als Referenzbrennstoffe diejenigen Brennstoffe untersucht, die entweder in einem drei Zyklen Betrieb einen Zielabbrand von 300 kWd/cm³ erreichen, oder in einem vier Zyklen Betrieb einen Zielabbrand von 450 kWd/cm³. Weiterhin ist es aufgrund der systematischen Fehler nicht sinnvoll, den anfänglichen Spaltstoffgehalt auf mehr als zwei signifikante Stellen genau festzulegen. Dazu werden die in Tabelle 7.1 angegebenen Werte für den anfänglichen Spaltstoffgehalt aufgerundet, da immer ein höherer als der bestimmte Spaltstoffgehalt für das sichere Erreichen des Zielabbrands vorgegeben werden soll. Für die so bestimmten Anreicherungen sind in Tabelle 7.2 Referenzbrennstoffe definiert, die als Grundlage für die weiteren Untersuchungen verwendet werden sollen.

Bezeichnung	Anreicherung/ Pu-Gehalt	Zyklen	Zielabbbrand [kWd/cm ³]
Uran			
Uran29	2,9% U-235	3	300
Uran39	3,9% U-235	4	450
RPu-MOX			
MOXR35	3,5% Pu-fis	3	300
MOXR49	4,9% Pu-fis	4	450
RPu-IMF			
RPu044	0,44 g(Pu-tot)/cm ³	3	300
RPu064	0,64 g(Pu-tot)/cm ³	4	450
WPu-MOX			
MOXW29	2,9% Pu-fis	3	300
MOXW40	4,0% Pu-fis	4	450
WPu-IMF			
WPu044	0,37 g(Pu-tot)/cm ³	3	300
WPu064	0,53 g(Pu-tot)/cm ³	4	450

Tabelle 7.2: Definition von Referenzbrennstoffen für die Brennstoff-Typen Uran, MOX und IMF.

Kapitel 8

Reaktivitätskontrolle und Bor-Wirksamkeit für die bislang untersuchten Referenzbrennstoffe

In diesem Kapitel werden kurz fundamentale Möglichkeiten zur Reaktivitätskontrolle im existierenden Leichtwasserreaktoren (LWR) skizziert. Darauf aufbauend wird die abbrand-abhängige Bor-Wirksamkeit der im letzten Kapitel eingeführten Referenzbrennstoffe bestimmt und auf dieser Basis abschließend der Bor-Bedarf zu Beginn eines Zyklus abgeschätzt. Daraus lässt sich die Notwendigkeit der Verwendung von brennbaren Neutronengiften in IMF ableiten.

8.1 Prinzipien der Reaktivitätskontrolle

Ein LWR wird typischerweise alle 12 bis 18 Monate neu beladen. Zu Beginn eines Zyklus muss dabei eine hinreichende Menge an Spaltstoff und damit überschüssiger Reaktivität für den gesamten Zyklus im Kern enthalten sein. Wie in Kapitel 6 beschrieben weist der Kern eines LWR zu Beginn eines Zyklus daher eine positive mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ auf.

Daraus entsteht jedoch die Notwendigkeit, die vorhandene Überschussreaktivität abbrand-abhängig durch geeignete Neutronenabsorber auszugleichen. Hierfür stehen drei wesentliche Optionen zur Verfügung, siehe bspw. Glasstone und Sesonske (1994, Kap. 5.155–5.213):

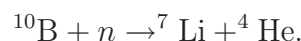
Reaktivitätskontrolle mit Steuerstäben: Eine erste Methode zur Reaktivitätskontrolle im LWR besteht im Einsatz von Steuerstäben. Verschiedene Materialien finden in Steuerstäben Verwendung, bspw. eine Silber-Indium-Cadmium Legierung oder, wenn eine höhere Steuerstabwirksamkeit benötigt wird, eine Bor-Carbid-Verbindung in der ggf. der B-10 Anteil erhöht werden kann.

Die Steuerstäbe sind zu sogenannten Steuerstab-Clustern (rod cluster control assembly, RCCA) zusammengefasst, welche symmetrisch im Kern angeordnet sind. Bei einem typischen 17×17 -Brennelement der Firma Westinghouse werden bspw. nur 264 Brennstabpositionen mit Brennstäben belegt. In die freibleibenden 25 Positionen kann ein RCCA mit 24 Steuerstäben eingebracht werden (die zentrale 25te Position wird von einem Führungsstab eingenommen).

Nicht alle Brennelement-Positionen werden mit RCCA ausgestattet. So verfügt ein typischer LWR (17×17 Brennstäbe im Element, 193 Brennelemente im Kern) über 53 RCCA, wobei einige weitere Positionen im Kern für eine ggf. notwendige Nachrüstung von RCCA vorgesehen sind, d. h. der Reaktordruckbehälter weist bspw. 73 Einlasspositionen für RCCA auf (Xu, 2003).¹

Die RCCA können als Steuerelemente (bei dem hier diskutierten Reaktortyp 25) und Abschaltetelemente (hier 28) dienen. Abschaltetelemente sind während des Normalbetriebs vollständig aus dem Kern ausgefahren und dienen dazu, den Kern jederzeit sicher in den Zustand der Unterkritikalität überführen zu können. Die Steuerelemente sind während des laufenden Betriebs teilweise in den Kern eingefahren und dienen zur Leistungsregelung sowie zum Ausgleich der Leistungsverteilung (power peaking) im Kern. Sie werden allerdings typischerweise nicht oder nur zu einem geringen Anteil eingesetzt, um die Überschussreaktivität des Kerns auszugleichen.

Einsatz von Borsäure im Kühlmittel: Zum Ausgleich des abbrandbedingten Reaktivitätsverlusts während eines Zyklus dient die Zugabe von Borsäure (H_2BO_3) zum Kühlmittel. Dies bewirkt eine sehr homogene Absenkung der Reaktivität über den gesamten Kern. Dabei dient das Isotop B-10 als wesentlicher Neutronenabsorber durch seine (n, α) -Reaktion:



Für die Möglichkeiten der Reaktivitätskontrolle durch den Einsatz von Borsäure im Kühlmittel gibt es jedoch zwei limitierende Effekte:

- Der pH-Wert des Kühlmittels wird durch den Einsatz von Borsäure verändert. Dem kann durch Zugabe von Lithiumhydroxid (LiOH) entgegengewirkt werden, dennoch existiert zur Vermeidung von Korrosionsproblemen ein Grenzwert für die Bor-Konzentration. Dieser beläuft sich typischerweise auf ca. 2000 ppm Bor (Glasstone und Sesonske, 1994, S. 280).²

¹Wie weiter unten diskutiert wird, reduziert der Einsatz plutoniumhaltiger Brennstoffe die Bor-Wirksamkeit und damit ebenso die Steuerstab-Wirksamkeit. Daher muss beim Einsatz solcher Brennstoffe in existierenden LWR üblicherweise die Anzahl der Steuerstab-Cluster erhöht werden, um eine konstante Regelleistung zu gewährleisten. In den gegenwärtig in Frankreich eingesetzten Reaktoren mit 900 MW elektrischer Leistung wäre gemäß Nisan und Lenain (1990) für einen 100% Anteil an MOX-Brennelementen im Kern die Zahl der Steuerelemente von derzeit 73 auf 101 zu erhöhen. Da diese nicht ohne weiteres nachgerüstet werden können, ist in solchen Reaktoren der Einsatz von MOX auf einen 33%-Anteil im Kern beschränkt.

²Bei der Angabe der Bor-Konzentration im Kühlmittel bezieht sich die Konzentration in ppm auf den Gewichtsanteil von Bor in Wasser, d. h. ein ppm entspricht einem Gramm Bor pro Tonne Wasser.

- Die Bor-Konzentration beeinflusst den Moderator-Temperaturkoeffizienten (MTC) bzw. den Moderatordichte-Koeffizienten (MVC). Eine Erhöhung der Bor-Konzentration im Kühlmittel führt zu einem weniger negativen Wert der Reaktivitätskoeffizienten. So gibt es eine maximale Bor-Konzentration, bei der diese Koeffizienten positiv werden.³ Da ein negativer Wert der Koeffizienten eine Voraussetzung für die Stabilität des Reaktorbetriebs ist, kann diese Konzentration einen weiteren Grenzwert der erlaubten Bor-Konzentration darstellen (siehe hierzu auch Kapitel 10.1.2).

Verwendung brennbarer Neutronengifte: Neben diesen beiden Standard-Methoden zur Reaktivitätskontrolle verlangen bestimmte Beladestrategien oder Brennstoffe mit höherer Anreicherung nach darüber hinausgehenden Optionen zur Reaktivitätskontrolle. Bspw. werden bei einer so genannten „Low-leakage“-Beladestrategie frische Brennelemente im Inneren des Kerns eingesetzt, teilabgebrannte Brennelemente dagegen am Rand des Kerns. Dies ist vorteilhaft, um die Neutronenfluenz des Reaktordruckbehälters zu reduzieren und (aufgrund der verbesserten Neutronenökonomie) die Brennstoff-Ausnutzung zu verbessern (siehe auch Anhang 6.1.2). Allerdings führt diese Beladestrategie zu ausgeprägten Leistungsdichte-Spitzen am Beginn eines Zyklus. Ähnliches gilt für Bestrebungen zur Erhöhung des Entladeabbrands, die mit größeren Anfangsanreicherung des Brennstoffs verbunden ist. Aufgrund der Begrenzungen der Bor-Konzentration im Kühlmittel sowie der Bestrebung nach einer möglichst gleichmäßigen Leistungsverteilung werden solche Reaktivitätsunterschiede durch die Verwendung von brennbaren Neutronengiften ausgeglichen (International Atomic Energy Agency, 1996). Diese Möglichkeit wird für die uranfreien Brennstoffe im nächsten Kapitel ausführlicher diskutiert werden.

Aufgrund des Einflusses der Borsäure auf den pH-Wert des Kühlmittels und den Einfluss auf Reaktivitätskoeffizienten ist wie oben diskutiert die maximal mögliche Bor-Konzentration im Kühlmittel typischerweise auf 2000 ppm beschränkt. Dieser Wert kann jedoch anlagenspezifisch variieren. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zur Reaktivitätskontrolle wird im Folgenden angenommen, dass eine maximale Konzentration von 2000 ppm Bor im Kühlmittel eingehalten werden muss.⁴ Es ist dann noch zu untersuchen, ob sich für einen ggf. identifizierten Referenzbrennstoff (hinreichend) negative Werte der Reaktivitätskoeffizienten ergeben. Daraus folgt, dass es eine maximale mittlere Überschussreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ gibt, welche durch Bor im Kühlmittel kompensiert werden kann. Wird diese überschritten, so ist bspw. die Verwendung von brennbaren Neutronengiften notwendig.

Daher wird im Folgenden zunächst die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit der im letzten Kapitel eingeführten Referenzbrennstoffe untersucht. Aus dieser kann anschließend der Bor-Bedarf und damit die Notwendigkeit der Verwendung von brennbaren Neutronengiften abgeleitet werden.

³Diese Konzentration hängt wiederum von der Anfangsanreicherung bzw. dem Plutoniumgehalt des Brennstoffs ab.

⁴Die folgenden Untersuchungen könnten selbstverständlich äquivalent für andere Werte der maximal zulässigen Bor-Konzentration durchgeführt werden.

8.2 Abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit für die Referenzbrennstoffe

Die Wirksamkeit von Bor im Kühlmittel wird durch den Koeffizienten der Bor-Wirksamkeit BWC (boron worth coefficient, siehe Kapitel 4.4.1) beschrieben. Dabei entspricht ein stärker negativer Wert des BWC einer höheren Effektivität des eingesetzten Bor. Der BWC ist primär vom Verhältnis der makroskopischen Wirkungsquerschnitte in den untersuchten Brennstoffen und damit von der Härte des Neutronenspektrums und den relativen Konzentrationen von Brennstoff und Bor abhängig. Je härter das Spektrum, desto geringer ist der effektive Wirkungsquerschnitt $\sigma_{(n,\alpha)}$ in B-10 und desto niedriger der makroskopische Querschnitt des Bor bei vorgegebener Konzentration. Je höher die Spaltstoff-Konzentration, desto geringer ist der relative Anteil der in Bor absorbierten Neutronen bei gegebenem makroskopischen Querschnitt. Für die bislang diskutierten Brennstoffe wird im Folgenden zunächst der abbrandabhängige Bor-Koeffizient BWC bestimmt (siehe hierzu auch Kapitel 4.4.1). Dabei werden jeweils bei den Schrittstellen der Abbrandrechnung (siehe Kapitel 4.3.3) Werte des BWC berechnet. Abbildung 8.1 zeigt den Verlauf von BWC(t) am Beispiel der Uran-Referenzbrennstoffe Uran29 und Uran39.

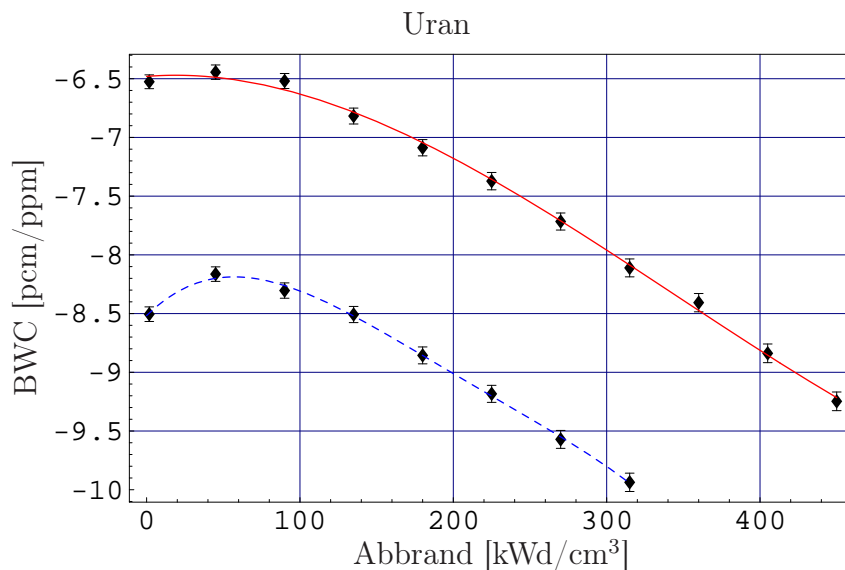


Abbildung 8.1: Abbrandabhängigkeit der Bor-Wirksamkeit (BWC) für die Uran-Referenzbrennstoffe Uran29 (- -) und Uran39 (—). Bestimmung des BWC beim Übergang von 0 ppm auf 2000 ppm Bor.

Der Wert des BWC sinkt für Uran29 von anfänglich etwa $-8,5$ auf $-10,0$ pcm/ppm, derjenige von Uran39 von $-6,5$ auf $-9,5$ pcm/ppm bei EOL. Damit steigt die Effektivität des Bor während des Abbrands um 20–45%. Zu Beginn des Abbrands ergibt sich ein sehr flacher Verlauf, im Falle von Uran29 sogar zunächst ein leichter Anstieg des BWC. Dies ist auf den Aufbau des stark thermisch absorbierenden Plutoniums zurückzuführen, welches zu Beginn des Abbrands den Abbau des U-235 praktisch ausgleicht.

In Abb. 8.2 ist der BWC für die Referenzbrennstoffe MOXR35 und MOXR42 sowie MOXW29 und MOXW40 dargestellt. Für alle Brennstoffe ergibt sich eine nahezu lineare Zunahme der Effektivität des Bor im Verlaufe des Abbrands.

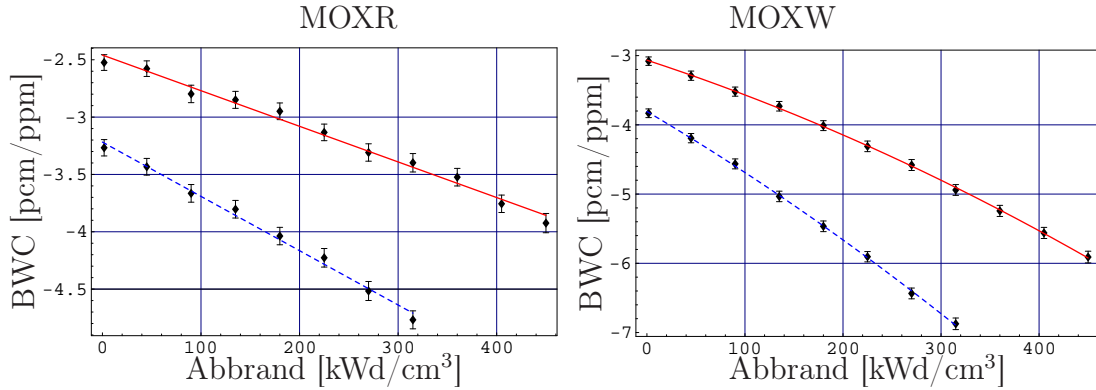


Abbildung 8.2: Abbrandabhängigkeit der Bor-Wirksamkeit BWC für die MOXR-Referenzbrennstoffe (links) MOXR35 (---) und MOXR42 (—), sowie die MOXW-Brennstoffe (rechts) MOXW29 (---) und MOXW40 (—). Bestimmung des BWC beim Übergang von 0 ppm auf 2000 ppm Bor.

Für beide MOXR-Brennstoffe ergibt sich eine Zunahme um etwa 50%, für die MOXW-Brennstoffe um 80–100%. Aufgrund des geringeren Anteils an spaltbaren Isotopen des Plutoniums in MOXR ist der anfänglich benötigte Plutoniumgehalt deutlich höher als in MOXW, weshalb BWC(BOL) mit $-2,5$ bzw. $-3,3$ pcm/ppm geringer ausfällt als für MOXW ($-3,0$ bzw. $-3,8$ pcm/ppm). Vergleicht man die Brennstoffe mit gleichem Zielabbrand, so liegen für beide MOX-Brennstoff-Typen die Werte des BWC um über einen Faktor zwei unter den Werten für die Uran-Brennstoffe. Dies ist auf das deutlich härtere Neutronenspektrum in plutoniumhaltigen Brennstoffen im Vergleich zu Uran-Brennstoffen aufgrund der höheren thermischen Wirkungsquerschnitte des Plutoniums zurückzuführen. Im Fall der MOXR-Brennstoffe gilt dies für die gesamte Dauer des Abbrands, bei den MOXW-Brennstoffen nimmt die Effektivität des Bor stärker zu, so dass bei EOL die Unterschiede zu den Uran-Brennstoffen nur noch bei etwa 50% liegen.

In Abb. 8.3 schließlich ist BWC(t) für die IMF-Referenzbrennstoffe RPu044 und RPu064 sowie WPu037 und WPu053 dargestellt. Auch für diese Brennstoffe fällt der BWC im Verlaufe der ersten zwei Drittel des Abbrands in guter Näherung linear. Aufgrund der sehr starken relativen Abnahme des Plutoniums im letzten Drittel des Abbrands sowie der damit verbundenen starken Thermalisierung des Neutronenspektrums steigt die Effektivität des Bor dann jedoch sehr stark an. So beträgt bspw. bei RPu064 der Wert des BWC(BOL) $-2,4$ pcm/ppm, bei 300 kWd/cm³ noch $-6,0$ pcm/ppm, bei EOL jedoch -22 pcm/ppm.

Bei allen vier IMF-Referenzbrennstoffen liegt BWC(BOL) zwischen $-2,3$ und $-3,1$ pcm/ppm und ist damit jeweils noch etwas weniger negativ als bei den vergleichbaren MOX-Brennstoffen, was auf die zum Erreichen des selben Zielabbrands benötigte höhere Plutonium-Anfangskonzentration zurückzuführen ist. Die Werte des BWC bei EOL lie-

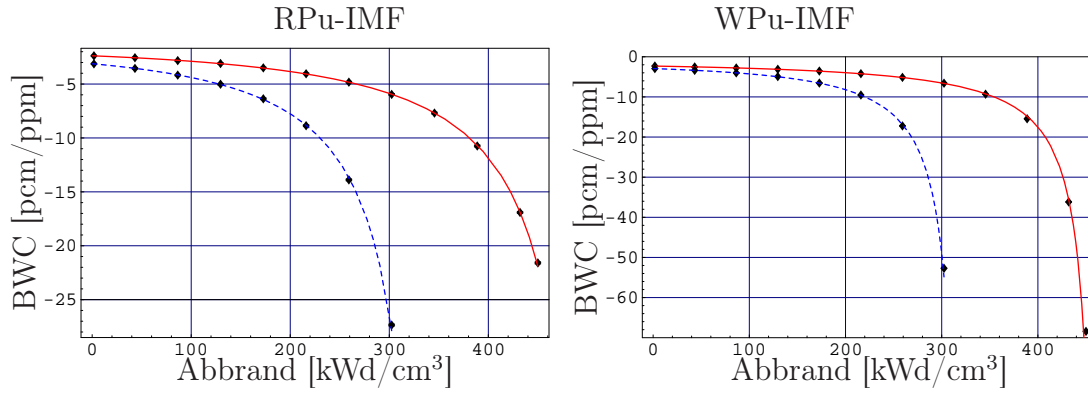


Abbildung 8.3: Abbrandabhängigkeit der Bor-Wirksamkeit BWC für die RPu-IMF-Referenzbrennstoffe (links) RPu044 (—) und RPu064 (—) sowie die WPu-Referenzbrennstoffe (rechts) WPu037 (—) und WPu053 (—). Bestimmung des BWC beim Übergang von 0 ppm auf 2000 ppm Bor.

gen jedoch mit Werten von -20 pcm/ppm bis zu -70 pcm/ppm bei WPu053 deutlich niedriger als bei MOX. Hier zeigt sich die starke relative Abnahme des Plutoniumgehalts zwischen BOL und EOL. So ist WPu053 auch der einzige Referenzbrennstoff mit einem Zielabbrand von 450 kWd/cm³, der bei EOL eine höhere Effektivität des Bor aufweist als der zugehörige Referenzbrennstoff mit Zielabbrand 300 kWd/cm³ (hier WPu037), was durch den besonders hohen relativen Plutonium-Umsatz in WPu053 bedingt ist.

8.3 Referenzbrennstoffe, Anfangsreaktivität und Bor-Bedarf

Aus der abbrandabhängigen Bor-Wirksamkeit $BWC(t)$ kann nun die mittlere Bor-Wirksamkeit $BWC_{av}(t)$ (mit $t \in [0, t_{cycle}]$) berechnet werden. Dazu wird, ebenso wie im Fall der Reaktivität (vergleiche Gl. 6.4), davon ausgegangen, dass sich $BWC_{av}(t)$ aus einer linearen Kombination des $BWC(t)$ der verschiedenen Anteile des Reaktorkerns ergibt (Smidt, 1976, Kapitel 10). Damit erhält man für $BWC_{av}(BOC)$:

$$BWC_{av}(BOC) = \frac{1}{n} \left(\sum_{i=0}^{n-1} BWC(i \cdot t_{cycle}) \right). \quad (8.1)$$

Aus der mittleren Bor-Wirksamkeit $BWC_{av}(t)$ und einer zum Zeitpunkt t im Reaktor eingestellten kritischen Bor-Konzentration $c_B(t)$ ergibt sich die durch den Bor-Gehalt kompensierte Reaktivität $\rho_B(t)$ zu

$$\rho_B(t) = BWC_{av}(t) \cdot c_B(t).$$

Zusammen mit den im letzten Kapitel bestimmten Werten für die mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(BOC)$ kann damit der Bor-Bedarf bei BOC ermittelt werden. Da für die

Einhaltung der Kritikalität die Reaktivität zu allen Zeitpunkten gleich Null sein muss, folgt unter Berücksichtigung der Neutronenverluste durch Leckage:

$$\rho_{av}(BOC) + \rho_B(BOC) - \rho_L \stackrel{!}{=} 0 \rightarrow c_B(BOC) = -\frac{\rho_{av}(BOC) - \rho_L}{BWC_{av}(BOC)}. \quad (8.2)$$

Die so bestimmten Werte für die kritische Bor-Konzentration $c_B(BOC)$ sind in Tabelle 8.1 zusammengefasst.⁵

Für die beiden Uran-Brennstoffe ergibt sich bei einer mittleren Anfangsreaktivität von etwa 0,12 und einem $BWC_{av}(BOC)$ von $-7,2$ bzw. $-8,6$ ppm/pcm ein typischer Bor-Bedarf zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität von 1100–1200 ppm. Dabei ist für den Brennstoff mit dem höheren Zielabbrand Uran39 trotz einer geringeren mittleren Anfangsreaktivität (die auf den Einsatz über vier Zyklen zurückzuführen ist) der Bor-Bedarf höher als bei Uran29. Dies ist durch die Abnahme der mittleren Bor-Wirksamkeit verursacht, welche wiederum durch die zum Erreichen des Abbrands notwendige höhere Anfangsanreicherung des Brennstoffs bedingt ist.

Brennstoff	Zyklen/ Abbrand	Anreicherung/ Pu-Gehalt	$\rho_{av}(BOC)$	$BWC_{av}(BOC)$ [pcm/ppm]	$c_B(BOC)$ [ppm]
Uran					
Uran29	3/300	2,9%	0,122	$-8,6$	1100
Uran39	4/450	3,9%	0,118	$-7,2$	1200
RPu-MOX					
MOXR35	3/300	3,5%	0,085	$-3,7$	1500
MOXR49	4/450	4,9%	0,081	$-3,0$	1700
RPu-IMF					
RPu044	3/300	0,44 g/cm ³	0,206	$-5,1$	3500
RPu064	4/450	0,64 g/cm ³	0,181	$-4,2$	3600
WPu-MOX					
MOXW29	3/300	2,9%	0,112	$-4,7$	1700
MOXW40	4/450	4,0%	0,102	$-4,0$	1800
WPu-IMF					
WPu037	3/300	0,37 g/cm ³	0,264	$-5,1$	4600
WPu053	4/450	0,53 g/cm ³	0,236	$-4,6$	4500

Tabelle 8.1: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(BOC)$, mittlere Bor-Wirksamkeit $BWC_{av}(BOC)$ und sich daraus ergebende kritische Bor-Konzentration $c_B(BOC)$ für die verschiedenen Referenzbrennstoffe.

Dieselbe Tendenz ergibt sich für MOXR und MOXW. Auch hier nimmt die mittlere Reaktivität beim Übergang von drei auf vier Zyklen trotz höheren Pu-Gehalts ab. Die

⁵Dabei wurde für die Neutronenverluste durch Leckage der in Abschnitt 6.1.2 eingeführte Wert von $\rho_L = 0,03$ zugrundegelegt.

mittlere Bor-Wirksamkeit, welche allerdings aufgrund des hohen Pu-Gehalts im Fall der MOX-Brennstoffe nur noch etwa halb so groß wie diejenige der Uran-Brennstoffe ist, nimmt mit steigendem Pu-Gehalt weiter ab und führt zu einem zunehmenden Bor-Bedarf bei BOC. Sowohl für MOXR mit 1500-1700 ppm als auch für MOXW mit 1700–1800 ppm liegt die unter den hier gemachten Annahmen bestimmte kritische Bor-Konzentration noch im akzeptablen Bereich von weniger als 2000 ppm.

Nicht mehr praktikabel erscheinende Werte für den Bor-Bedarf ergeben sich jedoch für die uranfreien Brennstoffe. Diese weisen zwar eine den MOX-Brennstoffen vergleichbare Bor-Wirksamkeit zwischen $-4,2$ ppm/pcm und $-5,1$ ppm/pcm auf (für die IMF-Brennstoffe mit RPu liegt der Betrag des BWC_{av} immerhin um etwa 50% über den Werten der MOXR-Brennstoffe). Aufgrund der fehlenden Neutronenabsorption in Uran liegt jedoch die anfängliche Überschussreaktivität bei allen IMF um etwa einen Faktor 2–2,5 über derjenigen der vergleichbaren MOX-Brennstoffe. Damit ergeben sich für den Bor-Bedarf bei BOC sehr hohe Werte im Bereich von 3500–4600 ppm. Für diese Brennstoffe kann daher eine Reaktivitätskontrolle allein auf der Basis von Bor im Kühlmittel unter den heute gegebenen Bedingungen nicht realisiert werden. Im folgenden Kapitel sollen daher nun verschiedene brennbare Neutronengifte zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität untersucht werden.

Kapitel 9

Uranfreie Brennstoffe und brennbare Neutronengifte (BP)

Nachdem im letzten Kapitel gezeigt wurde, dass das herkömmliche Verfahren zur Reaktivitätskontrolle durch die Verwendung von Bor im Kühlmittel für den Einsatz von uranfreien Brennstoffen nicht (alleine) ausreichend sein kann, sollen in diesem Kapitel Optionen zur Reduktion der anfänglichen Überschussreaktivität durch den Einsatz von so genannten brennbaren Neutronengiften (burnable poisons, BP) untersucht werden. Dazu werden zunächst verschiedene für diesen Zweck verwendbare Materialien in Hinblick auf wichtige Eigenschaften für einen Einsatz als BP diskutiert. Danach werden Abbrandrechnungen für uranfreie Brennstoffe auf der Basis von RPu und WPu mit vier verschiedenen BP (Bor, Europium, Erbium und Gadolinium) vorgestellt und eine erste Vorauswahl auf zwei genauer zu untersuchende BP (Erbium und Gadolinium) motiviert. Für diese beiden BP werden anschließend Untersuchungen für unterschiedliche Anfangskonzentrationen dieser BP diskutiert. Damit lassen sich abschließend weitere Referenzbrennstoffe identifizieren, die aus dem Gesichtspunkt der Reaktivitätskontrolle einen Einsatz von IMF im existierenden LWR möglich erscheinen lassen.

9.1 Neutronenphysikalische Eigenschaften möglicher brennbarer Neutronengifte

Beschränkungen der herkömmlichen Reaktivitätskontrolle durch den Einsatz von Bor im Moderator/Kühlmittel sind wie oben diskutiert einerseits auf sicherheitstechnische Einschränkungen (bspw. Notwendigkeit eines negativen Moderator-Temperaturkoeffizienten), andererseits auch auf technische Grenzen (bspw. Löslichkeit der Borsäure) zurückzuführen, so dass in heutigen Reaktoren typischerweise eine Obergrenze hinsichtlich der verwendbaren Bor-Konzentration im Kühlmittel von ca. 1500–2000 ppm vorliegt (siehe Kapitel 8). Wesentliches Ziel einer Reaktivitätskontrolle durch BP ist es daher, die anfängliche Überschussreaktivität von frischem Brennstoff zu kompensieren. Des weiteren kann

dadurch eine gleichmäßigere Leistungsverteilung zwischen frischen und teilabgebrannten Brennelementen erreicht werden (Asou und Porta, 1997).

Aus neutronenphysikalischer Sicht folgen daraus drei wesentliche Anforderungen, die bei der Gestaltung eines mit BP versehenen Brennelements erreicht werden sollen:

- Die anfänglich vorhandene Überschussreaktivität soll durch die enthaltenen Neutronengifte teilweise oder vollständig kompensiert werden, so dass die verbleibende Überschussreaktivität durch die Verwendung von Borsäure im Kühlmittel kontrolliert werden kann.
- Das Abbrandverhalten der Neutronengifte soll mit dem Reaktivitätsverlust im Brennstoff möglichst gut übereinstimmen, damit ein gleichmäßiger Reaktivitätsverlauf erreicht wird.
- Am Ende eines Zyklus sollte die anfänglich durch Neutronengifte eingebrachte negative Reaktivität möglichst vollständig aufgebraucht sein, damit der Einsatz der BP keine negativen Auswirkungen auf den erreichbaren Abbrand hervorruft.¹

Prinzipiell können verschiedene Nuklide als brennbare Neutronengifte geeignet sein. Wesentliche Voraussetzung ist dabei ein hoher Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang. Dieser gewährleistet sowohl die Wirksamkeit zur Reaktivitätsminderung, als auch einen angemessen schnellen Abbau des Neutronengiftes.

Neben Bor oder Gadolinium können als BP bspw. Elemente aus dem Bereich der Lanthanoide Verwendung finden. In Tabelle 9.1 sind einige wichtige Elemente, welche im Folgenden noch genauer untersucht werden, mit ihren grundsätzlichen Eigenschaften aufgeführt.

	Bor	Europium (Eu ₂ O ₃)	Gadolinium (Gd ₂ O ₃)	Erbium (Er ₂ O ₃)
Massenzahl	5	63	64	68
Natürliches Vorkommen [g/t]	8,7	1,8	5,2	3,0
Dichte [g/cm ³]	2,46	5,24 (7,42)	7,90 (7,43)	9,07 (8,60)
thermische Leitfähigkeit [W m ⁻¹ K ⁻¹]	27	14	11	15

Tabelle 9.1: Wichtige Eigenschaften für mögliche brennbare Neutronengifte gemäß Winter (2003), Werte für die Oxide in Klammern gemäß Asou und Porta (1997).

¹Für den erreichbaren Abbrand ist primär nicht die verbleibende BP-Menge bei EOL relevant, sondern die nach einem Zyklus noch verbleibende Menge, da diese den Wert von ρ_∞ nach dem ersten Zyklus beeinflusst, welcher in Gl. 6.2 eingeht.

Die hier diskutierten Elemente weisen ein hinreichend großes natürliches Vorkommen auf. Sie sind kommerziell zu Preisen erhältlich, die die Herstellungskosten von Kernbrennstoffen nur unwesentlich beeinflussen würden. Selbst bei der Verwendung der hier betrachteten Elemente aus dem Bereich der seltenen Erden würde die Verwendung von BP aus ökonomischer Sicht aufgrund der relativ geringen benötigten Mengen und der im Verhältnis hohen Herstellungskosten für ein typisches Brennelement keine Rolle spielen.²

Sollen die BP direkt in die Brennstoffmatrix eingebettet werden,³ so steht ein Teil des vorhandenen Brennstoffvolumens nicht mehr für den Brennstoff selbst zur Verfügung. Dies spielt im Fall der herkömmlichen Uran- oder auch MOX-Brennstoffe eine wichtige Rolle, so dass hier auch die Dichte des BP und der daraus resultierende Volumenbedarf des BP ein relevantes Kriterium darstellt. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten uranfreien Brennstoffe kann jedoch davon ausgegangen werden, dass bei der Verwendung von BP lediglich Teile der inerten Matrix durch das BP ersetzt werden würden, die vorgesehene anfängliche Plutoniumkonzentration hiervon jedoch nicht beeinträchtigt ist.

Aus materialtechnischer Sicht spielt weiterhin der Einfluss eines BP auf die Schmelztemperatur und die thermische Leitfähigkeit des Brennstoffs eine wichtige Rolle. So kann bspw. der Einsatz von Gadolinium die thermische Leitfähigkeit von konventionellen Uran-Brennstoffen reduzieren, was zu höheren Betriebstemperaturen und damit einer geringeren Sicherheitsmarge bei Störfällen führen kann. Da im Rahmen dieser Arbeit auf Fragen der materialtechnischen Entwicklung einer geeigneten Matrix für IMF und die zugehörige thermo-hydraulische Auslegung nicht eingegangen werden soll, wird dieser Aspekt hier nicht weiter diskutiert. Von primärer Bedeutung bei der Entwicklung von IMF ist in jedem Fall die Wahl einer Matrix mit entsprechend geeigneten Materialeigenschaften.

Eine sehr breite Untersuchung zu den Möglichkeiten unterschiedlichster brennbarer Neutronengifte im Zusammenhang mit konventionellen Uran-Brennstoffen wurde bspw. von Renier und Grossbeck (2001) vorgelegt. Diese kann sicherlich für die Bedingungen bei IMF zur Orientierung herangezogen werden. Aufgrund der spezifischen Unterschiede zwischen Uran-Brennstoffen und IMF sind jedoch eigene Untersuchungen zur Wirkungsweise der verschiedenen BP unverzichtbar. In den folgenden Abschnitten werden die neutronenphysikalischen Eigenschaften dieser BP zusammengefasst. Dabei wird zunächst die Isotopenzusammensetzung der natürlich vorkommenden Elemente angeführt, des Weiteren der thermische Wirkungsquerschnitt für die wesentliche Einfangsreaktion sowie das Resonanzintegral. Die beiden letzten Werte sind zur Abschätzung der Wirksamkeit des Neutronengifts wesentlich. Das Resonanzintegral kann darüber hinaus darauf hinweisen, ob ein Nuklid wesentlich als Resonanzabsorber fungiert. Dies kann zu einem negativen FTC beitragen und wäre im Fall von Plutonium-Brennstoffen besonders günstig, da diese einen nur schwach negativen FTC aufweisen (siehe Kapitel 10.1.1).

²So werden, wie unten gezeigt werden wird, für ein durchschnittliches Brennelement Mengen im kg-Bereich zur Reaktivitätskontrolle benötigt. Bei einem Preis von bspw. 9,3 US\$/kg Erbium (Stanford Materials, 2003) spielen die Kosten des BP im Vergleich zu typischen Herstellungskosten eines Brennelements von mehreren hunderttausend US\$ (Mark Hibbs, 1998) keine Rolle.

³Es existieren verschiedene technische Optionen zur Verwendung von BP, neben einer homogenen Einbettung in die Brennstoffmatrix kann auch eine Beschichtung des Brennstoffs oder die Verwendung von speziellen Absorberstäben vorgesehen werden.

Neben diesen vom konkreten Neutronenspektrum unabhängigen Größen wird anschließend noch der effektive Wirkungsquerschnitt für die oben gewählten Referenzbrennstoffe am Beispiel von MOXR bzw. RPu-IMF, jeweils bei BOL und EOL angegeben. Die Werte zu BOL sind entscheidend dafür, welche Anfangskonzentration des BPs für den Ausgleich der anfänglich vorhandenen Überschussreaktivität notwendig ist.⁴ Sie geben auch einen Eindruck davon, mit welcher Rate die BPs abbrennen. Da die Wirksamkeit eines BPs durch das Verhältnis seines makroskopischen Wirkungsquerschnitts für Neutroneneinfang $\sigma_a \cdot N^{BP}$ zur Neutronenabsorption im übrigen Brennstoff $\sum_i \sigma_a^i \cdot N^i$ bestimmt ist, ist die zeitliche Änderung der Wirksamkeit des BPs proportional zur Änderung des makroskopischen Wirkungsquerschnitts. Vernachlässigt man in erster Näherung die abbrandabhängige Änderung des effektiven Wirkungsquerschnitts σ_a , so folgt für die Änderung der Wirksamkeit eines BP $\frac{d}{dt}(\sigma_a N^{BP}) = \sigma_a \frac{dN^{BP}}{dt} = \sigma_a^2 N^{BP}$.⁵ Damit ist die Abnahme der Wirksamkeit eines BP sogar proportional zum Quadrat des effektiven Wirkungsquerschnitts. Damit ein BP einen möglichst geringen Einfluss auf den erreichbaren Entladeabbrand aufweist, sollte die BP-Wirksamkeit zum Ende des ersten Bestrahlungszyklus möglichst vollständig abgebaut sein.

Schließlich ist auch der effektive Wirkungsquerschnitt bei EOL angegeben. Dieser gibt einen Eindruck davon, ob sich die Wirksamkeit des BP im Laufe des Abbrands aufgrund von Effekten der räumlichen und energetischen Selbstabschirmung stark verändert.⁶ Während sowohl bei konventionellen MOX-Brennstoffen wie bei IMF die Konzentration eines BP (definitionsgemäß) stark abnimmt, ist bei IMF im Gegensatz zu MOX-Brennstoff typischerweise eine starke Zunahme der effektiven Wirkungsquerschnitte zu verzeichnen. Diese ist auf das wesentlich thermischere Neutronenspektrum bei EOL aufgrund der stark reduzierten Plutoniumkonzentration zurückzuführen. Bei einem starken thermischen Absorber kann der Anstieg des effektiven Wirkungsquerschnitts den Abbau der Konzentration des Nuklids teilweise kompensieren.

9.1.1 Bor als BP

Bei Bor handelt es sich um einen guten, aufgrund des reinen $1/v$ -Verlaufs des Wirkungsquerschnitts für die (n,α) -Reaktion rein thermischen Absorber. Mit einem thermischen Querschnitt von 3400 barn brennt es mit einer verhältnismäßig hohen Geschwindigkeit aus. Weder das dabei entstehende Lithium noch das Helium verfügen über hohe Neu-

⁴Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass die hier angegebenen Werte der effektiven Wirkungsquerschnitte auf den Brennstoffen ohne BP beruhen. Durch Zugabe des BP wird das Neutronenspektrum wiederum härter, was den effektiven Wirkungsquerschnitt der thermischen BPs erneut reduzieren kann. Auch bei Resonanzabsorbern kommt es durch den Effekt der Selbstabschirmung zu einer geringeren Wirksamkeit des BP, als es durch die für einen BP-freien Brennstoff bestimmten Wirkungsquerschnitte zu erwarten ist.

⁵Dieser Zusammenhang ist selbstverständlich nur dann erfüllt, wenn das relevante Nuklid des BP durch Neutroneneinfang in ein Nuklid umgewandelt wird, welches selbst nur einen geringen Einfangsquerschnitt aufweist.

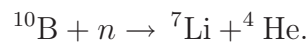
⁶Sehr hohe thermische Wirkungsquerschnitte führen zu einer ausgeprägten Selbstabschirmung, die in geringeren effektiven Wirkungsquerschnitten resultiert. Bei Abbau eines entsprechenden Nuklids nimmt zugleich die Selbstabschirmung ab und damit der effektive Wirkungsquerschnitt zu.

tronenabsorptionsquerschnitte, so dass sie praktisch keinen Einfluss auf die Reaktivität aufweisen. Auch das im natürlichen Bor zu über achtzig Prozent enthaltene B-11 spielt aufgrund seines sehr geringen Wirkungsquerschnitts praktisch keine Rolle.

B-Isotop	10	11
Prozess	(n, α)	(n, γ)
Anteil Element [%]	19,9	80,1
$\sigma(\text{therm})$ [barn]	3400	$4,5 \cdot 10^{-3}$
$\sigma(\text{res})$ [barn]	1719	$2,5 \cdot 10^{-3}$
σ_{eff} für MOXR49 bei BOL (EOL) [barn]	89,1 (109)	
σ_{eff} für RPu064 bei BOL (EOL) [barn]	104,7 (454,1)	

Tabelle 9.2: Isotopenzusammensetzung und Wirkungsquerschnitte für Bor. Thermischer Querschnitt für eine Maxwellverteilung um 0,0253 eV und Resonanzintegral gemäß Korea Atomic Energy Research Institute (2004) und OECD/NEA (2004). Werte der Querschnitte für MOXR49 und RPu064 aus MCMATH (für EOL bei 450 kWd/cm³).

Ein Nachteil bei der Verwendung von Bor als BP liegt in der Freisetzung von Helium aus der (n, α)-Reaktion des B-10:



Soll Bor in die Brennstoffmatrix eingebettet werden, so kann dies zu einer beträchtlichen Gasproduktion zusätzlich zu den entstehenden Spaltgasen führen, und damit zum Brennstoffschwellen beitragen. Eine Möglichkeit der Verwendung von Bor als BP besteht daher darin, die Brennstoffpellets mit einer dünnen Beschichtung aus ZrB₂ zu überziehen (Integrated fuel burnable absorber, IFBA). So wird das bei der (n, α)-Reaktion in Bor entstehende Heliumgas nicht in der Brennstoffmatrix selbst freigesetzt und kann sich vielmehr im Plenum eines Brennstabs ansammeln.

Weiterhin ist in Tabelle 9.2 gut zu erkennen, dass für einen konventionellen MOX-Brennstoff der effektive Wirkungsquerschnitt in B-10 zwischen BOL und EOL nur um ca. 10% (von ca. 90 auf 100 barn) zunimmt. Demgegenüber würde sich beim Einsatz eines IMF auf RPu-Basis der effektive Wirkungsquerschnitt um mehr 400% erhöhen, was die starke Veränderung des Neutronenspektrums beim Einsatz von IMF widerspiegelt.

9.1.2 Europium als BP

Das natürlich vorkommende Europium besteht zu jeweils ca. 50% aus den beiden Isotopen Eu-151 und Eu-153. Beide Isotope weisen einen hohen Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang auf, verglichen mit der (n, α)-Reaktion des B-10 ist bspw. bei BOL für einen typischen MOX-Brennstoff der effektive Querschnitt des Eu-151 ca. doppelt so hoch wie derjenige des B-10, derjenige von Eu-153 immerhin etwa halb so groß. Drei Viertel der Neutronenabsorption in natürlichem Europium entfallen daher auf das Isotop Eu-151.

Eu-Isotop	151	152	153	154	155
Anteil Element [%]	47,8		52,2		
$\sigma_{(n,\gamma)}$ (therm) [barn]	7330	10500	274	1960	3400
$\sigma_{(n,\gamma)}$ (res) [barn]	3070	2170	1410	1180	15600
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für MOXR49 bei BOL (EOL) [barn]	222 (270)	151 (192)	42,8 (42,6)	71,2 (86,2)	566 (589)
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für RPu064 bei BOL (EOL) [barn]	259 (935)	179 (938)	48,7 (68,5)	83,1 (343,2)	654 (1241)

Tabelle 9.3: Isotopenzusammensetzung und Wirkungsquerschnitte für Europium. Thermischer Querschnitt für eine Maxwellverteilung um 0,0253 eV und Resonanzintegral gemäß Korea Atomic Energy Research Institute (2004) und OECD/NEA (2004). Werte der Querschnitte für MOXR49 und RPu064 aus MCMATH (für EOL bei 450 kWd/cm³).

Beide Isotope werden bei Neutroneneinfang in andere Isotope des Europium umgewandelt, welche ebenfalls hohe Wirkungsquerschnitte für Neutroneneinfang aufweisen. Dadurch nimmt die Wirksamkeit des anfänglich vorhandenen Europiums als Neutronengift wesentlich langsamer ab, als es aufgrund der makroskopischen Wirkungsquerschnitte zunächst zu erwarten wäre. Dies sei kurz am Beispiel eines typischen MOX-Brennstoffs bei BOL demonstriert. Neutroneneinfang in Eu-151 führt zur Produktion von Eu-152 mit einem hier im Vergleich zu Eu-151 um ca. 30% reduzierten effektiven Wirkungsquerschnitt, d. h. die Wirksamkeit des Eu-151 als Neutronenabsorber nimmt nach einmaligem Neutroneneinfang nur um 30% ab. Erst nach einem zweiten Neutroneneinfang, welcher zur Bildung von Eu-153 führt, wäre der effektive Querschnitt nochmals um ca. 50% (bezogen auf den ursprünglichen Wert des Eu-151) reduziert. Ein Neutroneneinfang in Eu-153 wiederum führt zum Isotop Eu-154, welches einen um ca. 60% höheren effektiven Wirkungsquerschnitt als Eu-153 aufweist. Ein weiterer Einfang würde zur Bildung von Eu-155 führen, welches den mit über 500 barn größten effektiven Wirkungsquerschnitt der hier betrachteten Eu-Isotope aufweist und damit sogar zu einem Anstieg der Wirksamkeit des Europium als Neutronengift führen könnte.

Bei der Verwendung von Europium ist also trotz der hohen anfänglichen Wirksamkeit ein sehr schlechtes Verhalten als BP zu erwarten, da der makroskopische Wirkungsquerschnitt des Europium auch durch mehrere Neutronen-Einfangsreaktionen nur schwach reduziert wird.

9.1.3 Gadolinium als BP

Für die Funktion von Gadolinium als brennbarem Neutronengift sind die Isotope Gd-155 und Gd-157 von besonderer Bedeutung. Beide haben einen Anteil von etwa 15% am natürlichen Gadolinium und weisen extrem hohe Wirkungsquerschnitte für thermische Neutronen auf. So sind für einen typischen MOX-Brennstoff die effektiven Wirkungsquerschnitte für Neutroneneinfang um einen Faktor vier (Gd-155) bzw. siebzehn (Gd-157)

höher als der (n,α) -Querschnitt in B-10. Gleichzeitig entstehen nach Neutroneneinfang Gd-Isotope mit effektiven Querschnitten, welche zwei bis drei Größenordnungen geringer sind als diejenigen von Gd-155 bzw. 157. Damit stellt Gadolinium ein sehr effizientes BP dar, dass im Gegensatz zu Europium auch sehr schnell an Wirksamkeit verliert.

Aufgrund der hohen thermischen Wirkungsquerschnitte führt der Einsatz von Gadolinium als BP jedoch auch zu einem stärker positiven MVC, da bei einer reduzierten Moderation die Wirksamkeit dieses Neutronenabsorbers sehr stark abnimmt. Insbesondere zu BOL (d. h. bei der höchsten Gd-Konzentration) kann dies zu Beschränkungen hinsichtlich der Einsetzbarkeit von Gd führen (siehe hierzu Kapitel 10).

Gd-Isotop	152	154	155	156	157	158	160
Anteil Element [%]	0,2	2,18	14,8	20,47	15,65	24,84	21,86
$\sigma_{(n,\gamma)}$ (therm) [barn]	934	74,8	45500	1,94	192000	2,21	0,706
$\sigma_{(n,\gamma)}$ (res) [barn]	990	215	1530	121	761	63,9	12,0
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für MOXR49 bei BOL (EOL) [barn]	9,5 (9,4)	8,0 (8,7)	430 (610)	3,4 (3,1)	1700 (2500)	1,7 (1,8)	0,3 (0,3)
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für RPu064 bei BOL (EOL) [barn]	13,2 (13,1)	8,3 (15,8)	531 (3710)	3,7 (3,1)	2140 (15900)	1,8 (2,0)	0,3 (0,3)

Tabelle 9.4: Isotopenzusammensetzung und Wirkungsquerschnitte für Gadolinium. Thermischer Querschnitt für eine Maxwellverteilung um 0,0253 eV und Resonanzintegral gemäß Korea Atomic Energy Research Institute (2004) und OECD/NEA (2004). Werte der Querschnitte für MOXR49 und RPu064 aus MCMATH (für EOL bei 450 kWd/cm³).

Durch die sehr hohen thermischen Querschnitte der wichtigen Gd-Isotope kommt es zu einer starken räumlichen Selbstabschirmung bei Brennstäben, die Gd als BP enthalten. Bereits bei einer Konzentration von 0,1 g/cm³ Gadolinium ist die mittlere freie Weglänge für voll thermalisierte Neutronen kleiner als 1 mm, d. h. von der Größe des Durchmessers der Brennstäbe. Neutronen, die im Kühlmittel moderiert wurden, werden daher als thermische Neutronen in den Brennstäben sehr schnell absorbiert. Damit wird jedoch wiederum die Wirksamkeit des Gadolinium reduziert, da bei höheren Konzentrationen praktisch nur noch der äußere Rand eines Brennstabs von den thermischen Neutronen „wahrgenommen“ wird.

Dieser Effekt kann wiederum für eine sehr präzise Reaktivitätskontrolle mit Gadolinium genutzt werden. Hierzu kann sowohl die Gd-Anfangskonzentration wie die Anzahl an Gd-enthaltenden Brennstäben variiert werden. Da bei einer höheren Gd-Konzentration praktisch nur der Anteil des im äußeren Rand eines Brennstabs befindlichen Gadoliniums zur Neutronenabsorption beiträgt, ist die anfängliche Reaktivitätsminderung proportional zur Zahl der Gd-enthaltenden Stäbe. Die Dauer bis zum vollständigen Ausbrennen des Gadoliniums wird andererseits durch die Gd-Konzentration bestimmt, so dass im Prinzip zwei unabhängige Parameter zur Optimierung des Gd-Einsatzes vorliegen. So wurde für herkömmliche Uran-Brennstoffe bspw. eine Strategie für eine Reaktivitätskontrolle mittels Gadolinium entwickelt, die eine Reaktivitätskontrolle durch Bor im Kühlmittel fast

vollständig überflüssig machen könnte (Galperin et al., 1986; Galperin, 1987).

Bei den im Folgenden vorgenommenen Untersuchungen wird jedoch noch keine solche Optimierung vorgenommen. Hierzu wäre die Untersuchung eines heterogenen Systems aus Brennstäben mit unterschiedlicher Gd-Konzentration notwendig, was mit der gegenwärtigen Version von MCMATH nicht durchgeführt werden kann. Auch soll im Rahmen dieser Arbeit nur untersucht werden, welchen Einfluss der Einsatz von BP auf die in Kapitel 3 eingeführten Indikatoren aufweisen würde. Hierzu wird im Folgenden lediglich untersucht, welche Mindestkonzentration von Gd zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität notwendig wäre. Dabei wird sich zeigen, dass Gadolinium nur einen sehr geringen Einfluss auf den erreichbaren maximalen Abbrand aufweist und damit die erreichbare Plutoniumreduktion nur unwesentlich beeinflusst wird. Allerdings kann die Verwendung von Gd einen deutlichen Einfluss auf wesentliche Reaktivitätskoeffizienten (FTC, MVC) zeigen.

9.1.4 Erbium als BP

Abschließend soll an dieser Stelle noch das mögliche BP Erbium diskutiert werden. Das wesentliche wirksame Isotop des Erbium ist Er-167. Dieses weist zwar keinen besonders hohen thermischen Wirkungsquerschnitt auf, zeigt aber ausgeprägte Resonanzen mit hohen Querschnitten, insbesondere eine Resonanz bei 0,46 eV,⁷ so dass der Wert des Resonanzintegrals bei Er-157 mit 3390 barn sehr hoch ist. Da Er-167 bei Neutroneneinfang in das Isotop 168 mit kleinem Querschnitt umgewandelt wird, nimmt seine Wirksamkeit als BP auch relativ schnell ab.

Erbium						
Er-Isotop	162	164	166	167	168	170
Anteil Element [%]	0,14	1,61	33,6	22,95	26,8	14,9
$\sigma_{(n,\gamma)}(\text{therm})$ [barn]			18,3	618	2,74	
$\sigma_{(n,\gamma)}(\text{res})$ [barn]			110	3390		
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für MOXR49 bei BOL (EOL) [barn]	12,1 11,6	5,5 5,5	3,3 (3,4)	107 (115)	1,3 1,3	2,1 (2,0)
$\sigma_{(n,\gamma),\text{eff}}$ für RPu064 bei BOL (EOL) [barn]	13,5 (13,8)	5,6 (6,2)	3,5 (5,0)	126 (245)	1,4 (1,5)	2,1 (2,4)

Tabelle 9.5: Isotopenzusammensetzung und Wirkungsquerschnitte für Erbium. Thermischer Querschnitt für eine Maxwellverteilung um 0,0253 eV und Resonanzintegral gemäß (Korea Atomic Energy Research Institute, 2004) und OECD/NEA (2004). Werte der Querschnitte für MOXR49 und RPu064 aus MCMATH (für EOL bei 450 kWd/cm³).

Da ca. 35% des natürlichen Erbium aus dem Isotop Er-166 bestehen, wird jedoch auch durch Neutroneneinfang in diesem Isotop beständig neues Er-167 nachproduziert. Damit

⁷Hier weist Er-167 einen Einfangsquerschnitt von 9800 barn auf.

wird auch nach relativ langer Bestrahlungszeit immer noch ein negativer Einfluss auf die Reaktivität des Brennstoffs verbleiben, so dass Einbußen bzgl. des maximal erreichbaren Abbrands zu erwarten sind.

Da Erbium wesentlich als Resonanzabsorber fungiert, beeinflusst es den MVC nicht gleich stark wie Gadolinium. Gleichzeitig liefert es einen negativen Beitrag zum FTC. Da dieser für die IMF-Brennstoffe ohne BP gerade zu BOL nur sehr schwach negativ ausfällt, kann die Verwendung von Erbium als BP aus Sicht des Einflusses auf die Reaktivitätskoeffizienten günstiger als die Verwendung von Gadolinium beim Einsatz von IMF sein (siehe Kapitel 10.1.1).

9.1.5 Schlussfolgerungen

Die verschiedenen denkbaren Neutronengifte weisen somit spezifische Vor- und Nachteile bzgl. einer Verwendung als BP auf. Dabei zeigen sich auch prinzipielle Unterschiede hinsichtlich des verwendeten Brennstoffs (MOX vs. IMF).

Bei MOX-Brennstoffen kann ein Teil des verfügbaren Brennstoffvolumens durch die Zugabe von Neutronengiften belegt werden, was das Anfangsinventar verringert. Bei IMF spielt dies kaum eine Rolle, sofern durch das eingebrachte BP lediglich die inerte Matrix ersetzt werden würde. Allerdings können die verschiedenen BP die thermischen Eigenschaften des Brennstoffs beeinflussen.

Bei der Verwendung von Bor im Brennstab erhöht sich die Gasentwicklung, was einen limitierenden Faktor darstellen kann. Die durch Europium eingebrachte negative Reaktivität wird am schlechtesten abgebaut, so dass deutliche Auswirkungen auf die erreichbare Zykluslänge zu erwarten sind. Die Zugabe von Gadolinium kann negative Auswirkungen auf den MVC bedingen, die Verwendung von Erbium demgegenüber könnte den FTC verbessern. Eine quantitative Untersuchung dieser Effekte erfolgt in Kapitel 10.

9.2 Abbrandrechnungen zu IMF mit BP

Die im letzten Abschnitt diskutierten BP sollen nun auf ihre Auswirkungen hinsichtlich des Reaktivitätsverlaufs und des erreichbaren Entladeabbrands für IMF auf der Basis von RPu und WPu untersucht werden. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird dabei zunächst nur ein Vier-Zyklen-Abbrand bis 450 kWd/cm³ behandelt. Da zunächst die genauen Auswirkungen der BP auf den Reaktivitätsverlauf nicht bekannt sind, wurde hierzu für jedes BP eine Anfangskonzentration festgelegt, die bei den Referenzbrennstoffen für $n = 4$ — bei RPu-IMF ist dies RPu064, bei WPu-IMF WPu053 — zu einem anfänglichen Multiplikationsfaktor von $k_{\infty} \leq 1,1$ führt.

Die hierfür benötigten BP-Konzentrationen wurden zunächst anhand der effektiven Wirkungsquerschnitte und der anfänglichen Reaktivität der Referenzbrennstoffe abgeschätzt und durch MCNP-Rechnungen verifiziert. Die aufgrund dieser Bedingung gewählten Kon-

zentrationen für die verschiedenen BP finden sich in Tabelle 9.6.

	Bor	Europium	Gadolinium	Erbium	
RPu-IMF	0,02	0,04	0,03	0,28	[g/cm ³]
WPu-IMF	0,03	0,06	0,04	0,40	[g/cm ³]

Tabelle 9.6: Referenzkonzentrationen der vier betrachteten brennbaren Neutronengifte für die IMF auf der Basis von RPu und WPu. Alle Angaben in [g/cm³].

Mit diesen so bestimmten Referenzkonzentrationen wurden Abbrandrechnungen für alle verschiedenen Pu-Anfangskonzentrationen durchgeführt, um die Auswirkung der BP auf den Zielabbrand und die sich ergebende mittlere Überschussreaktivität bestimmen zu können. In Abschnitt 9.5 wird anschließend noch die Bor-Wirksamkeit bei diesen IMF untersucht, um Aussagen zur Reaktivitätskontrolle für diese IMF zu ermöglichen.

9.2.1 Reaktivitätsverlauf von IMF mit verschiedenen BP

In Abbildung 9.1 ist die abbrandabhängige Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ für RPu-IMF unter Zugabe der vier betrachteten BP dargestellt. Zunächst ist festzustellen, dass die Reaktivität ρ_0 bei Beginn des Abbrands nicht mehr nur schwach vom Pu-Gehalt abhängt, wie dies bei RPu-IMF ohne BP der Fall ist (vergleiche Abbildung 7.4). Dies ist darauf zurückzuführen, dass die von den BP verursachte Reaktivitätsdifferenz vom Verhältnis der Neutronenabsorption im BP zu derjenigen im Plutonium abhängt, d. h. bei einer höheren Pu-Konzentration weniger Neutronen von den BP eingefangen werden. Damit ergibt sich für die IMF mit höherem Pu-Anfangsgehalt bei gleicher BP-Konzentration eine höhere Anfangsreaktivität ρ_0 .

Auch das Abbrandverhalten der BP ist, wie bereits im letzten Abschnitt begründet, stark unterschiedlich. Bei der Verwendung von Bor als BP ergibt sich für hohe Pu-Konzentrationen ein sehr flacher Reaktivitätsverlauf, bei niedrigen Pu-Konzentrationen steigt die Reaktivität durch den Abbau des Bor bis zu einem Abbrand von ca. 150 kWd/cm³ sogar an. Danach ist der Reaktivitätsverlauf zwischen RPu-IMF und Brennstoffen mit Bor (RPBo) vergleichbar, allerdings liegt die Reaktivität der RPBo-Brennstoffe bis EOL unter derjenigen der RPu-IMF. Während die Reaktivitätsdifferenz zwischen RPu- und RPBo-IMF gleicher Pu-Konzentration bei BOL zwischen 0,15 und 0,35 liegt, beläuft sie sich bei EOL typischerweise nur noch auf etwa 0,01.⁸

Für Europium als BP (RPEu-IMF) zeigt sich lediglich bei der niedrigsten Pu-Konzentration ein Anstieg der Reaktivität zu Beginn des Abbrands, bei höheren Pu-Konzentrationen ist der Abbau des Europium nicht ausreichend, um den durch das Abbrennen des Plutoniums verursachten Reaktivitätsverlust auszugleichen. Die hier gewählte Eu-Konzentration bewirkt bei BOL eine Reaktivitätsminderung gegenüber den reinen

⁸Aussagen bzgl. der Werte bei EOL beziehen sich hier und im Folgenden auf diejenigen Brennstoffe, die bei einem Gesamtabbrand von 450 kWd/cm³ noch eine Reaktivität größer als $-0,4$ aufweisen.

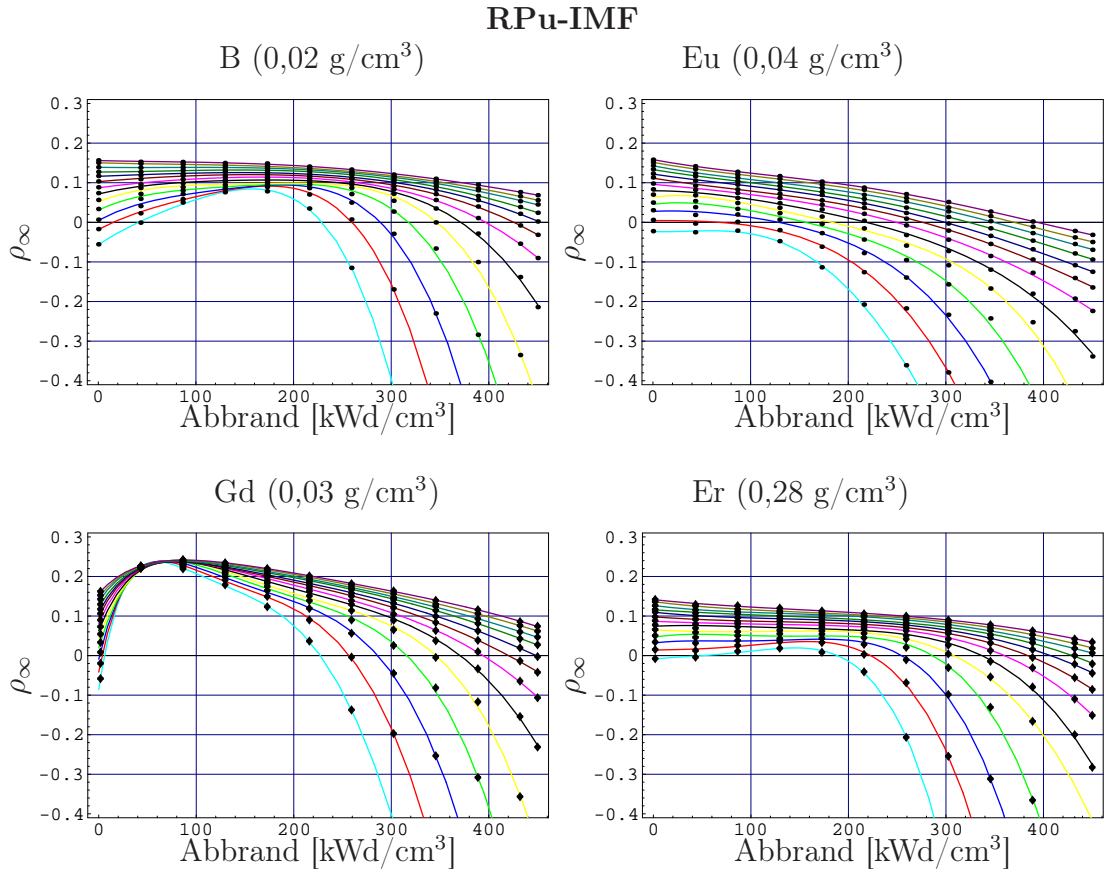


Abbildung 9.1: Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ für Brennstoffe mit einer anfänglichen RPu-Konzentration von 0,4 (cyan) – 1,0 (braun) g/cm³ in Schritten von 0,05 g/cm³.

RPu-IMF von 0,15–0,32, vergleichbar zu den untersuchten Brennstoffen mit Bor als BP. Allerdings liegen auch bei EOL die Reaktivitäten der RPEu-IMF noch um 0,05–0,12 unter denjenigen der reinen RPu-IMF. Damit erweist sich Eu hinsichtlich der Reaktivitätsentwicklung erwartungsgemäß als relativ schlechtes BP.

Genau gegenteilig zu Europium verhält sich Gadolinium (RPGd-IMF).⁹ Auch hier liegen die Anfangsreaktivitäten wie bei Bor um 0,15–0,35 unter denjenigen von RPu-IMF. Allerdings nimmt für alle Pu-Konzentrationen die Reaktivität über die ersten 70–100 kWd/cm³ zu und liegt bei EOL nur noch geringfügig (0,002–0,006) unter den Werten der reinen RPu-IMF.¹⁰ Auch tritt bei der Verwendung von Gd als BP die ungewöhnliche Situation auf,

⁹Aufgrund des sehr schnellen Abbaus des Gadoliniums nimmt die Reaktivität zu Beginn des Abbrands entsprechend sehr stark zu. Dabei folgt der Anstieg der Reaktivität in guter Näherung dem exponentiellen Abbau des Gadoliniums. Für die Beschreibung des abbrandabhängigen Reaktivitätsverlaufs bei Gadolinium wurde daher der Ansatz eines Polynoms vierter Ordnung um einen exponentiell abklingenden Beitrag erweitert. Dessen Zeitkonstante wurde aus dem effektiven Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang des Gd-157 und dem effektiven Neutronenfluss bestimmt.

¹⁰Selbst bei einem quasi vollständigen Ausbrennen eines BP können Reaktivitätsunterschiede bei EOL noch dadurch hervorgerufen werden, dass sich aufgrund der Unterschiede im Neutronenspektrum zu Beginn des Abbrands eine unterschiedliche Isotopenzusammensetzung des Pu bzw. der daraus gebildeten

dass für kleine Abbrände zwischen ca. 30–90 kWd/cm³ die Reaktivität von Brennstoffen mit geringer Pu-Konzentration größer ist als diejenige von Brennstoffen mit höherer Pu-Konzentration. Dies ist im Rahmen der hier durchgeführten Berechnungen auf die Annahme einer konstanten Leistungsdichte zurückzuführen. Diese führt bei einer geringeren Pu-Konzentration zu einem höheren thermischen Neutronenfluss. Dieser wiederum verursacht den schnelleren Abbau des starken Neutronenabsorbers Gadolinium. Sowie mit zunehmendem Abbrand auch in den Brennstoffen mit höherer Pu-Konzentration das anfänglich enthaltene Gd ausgebrannt ist kehrt sich die Situation wieder um, und die Brennstoffe mit höherer Pu-Anfangskonzentration weisen wieder eine höhere Reaktivität auf.

Für Erbium als BP (RPEr-IMF) ergibt sich dann wiederum ein Reaktivitätsverlauf, der zwischen demjenigen von RPBo-IMF und RPEu-IMF liegt. Bei BOL ist die Wirkung der hier untersuchten Er-Konzentration vergleichbar zu den RPBo-IMF, es ergibt sich eine Reaktivitätsminderung um 0,15–0,3 abhängig vom Pu-Anfangsgehalt. Dabei ist die Wirkung des Erbium bei den Brennstoffen mit niedriger Pu-Konzentration geringer als im Fall von Bor. Dies ist wesentlich mit darauf zurückzuführen, dass Bor als rein thermischer Neutronenabsorber bei Brennstoffen mit geringerer Pu-Konzentration und damit stärker thermischem Neutronenspektrum eine höhere Wirksamkeit aufweist als bei höheren Pu-Konzentrationen. Dagegen handelt es sich bei Er um einen starken Resonanzabsorber, der bei der hier vorliegenden Er-Konzentration zu einer starken energetischen Selbstabschirmung führt, jedoch in geringerem Maße von der Pu-Konzentration abhängig ist wie Bor als BP.¹¹ Für Abbrände bis ca. 150 kWd/cm³ ergibt sich bei der Verwendung von Er ein sehr flacher Reaktivitätsverlauf, bei niedrigen Pu-Konzentrationen steigt die Reaktivität sogar leicht an. Bei EOL liegen die Reaktivitäten noch um 0,04–0,06 unter den Reaktivitäten der RPu-IMF und sind damit noch deutlich reduziert, wenn der Effekt auch nicht mehr so stark ist wie bei den Brennstoffen mit Europium als BP.

Für die Brennstoffe auf WPu-Basis ergeben sich hinsichtlich des Reaktivitätsverlaufs bei Verwendung der unterschiedlichen BP keine qualitativen Unterschiede. Eine quantitative Diskussion soll an dieser Stelle nicht vorgenommen werden. Die im wesentlichen interessierenden gemittelten Größen (Anfangsreaktivität, Bor-Wirksamkeit etc.) werden jedoch in den folgenden Abschnitten mit diskutiert.

9.2.2 IMF mit BP und erreichbarer Entladeabbrand B_d

Da die bislang untersuchten BP-Konzentrationen anhand der Anfangsreaktivitäten der Referenzbrennstoffe zur Erreichung eines Zielabbrands von 450 kWd/cm³ entsprechend einem vier Zyklen Abbrand festgelegt wurden, werden hier auch zunächst nur die erreichbaren Abbrände für $n = 4$ diskutiert (siehe Abschnitt 9.4 für die Ergebnisse bei $n = 3$). Die Abbildung 9.2 stellt den maximal erreichbaren Entladeabbrand B_d in Abhängigkeit

höheren Aktiniden ergeben.

¹¹Bei einer RPu-Konzentration von 0,4 g/cm³ ergibt sich zu BOL ein effektiver (n,α)-Querschnitt für B-10 von 101 b, beim Brennstoff mit einer RPu-Konzentration von 1,0 g/cm³ liegt dieser Wert noch bei 60 b. Für Er-167 ein effektiver (n,γ)-Querschnitt von 83 b bzw. 54 b.

von der anfänglichen Pu-Konzentration für die RPu-IMF mit den betrachteten BP bei $n = 4$ dar.¹² Dabei ist in den einzelnen Graphiken jeweils B_d für RPu-IMF ohne BP sowie für RPu-IMF mit der vorgegebenen BP-Konzentration wiedergegeben.

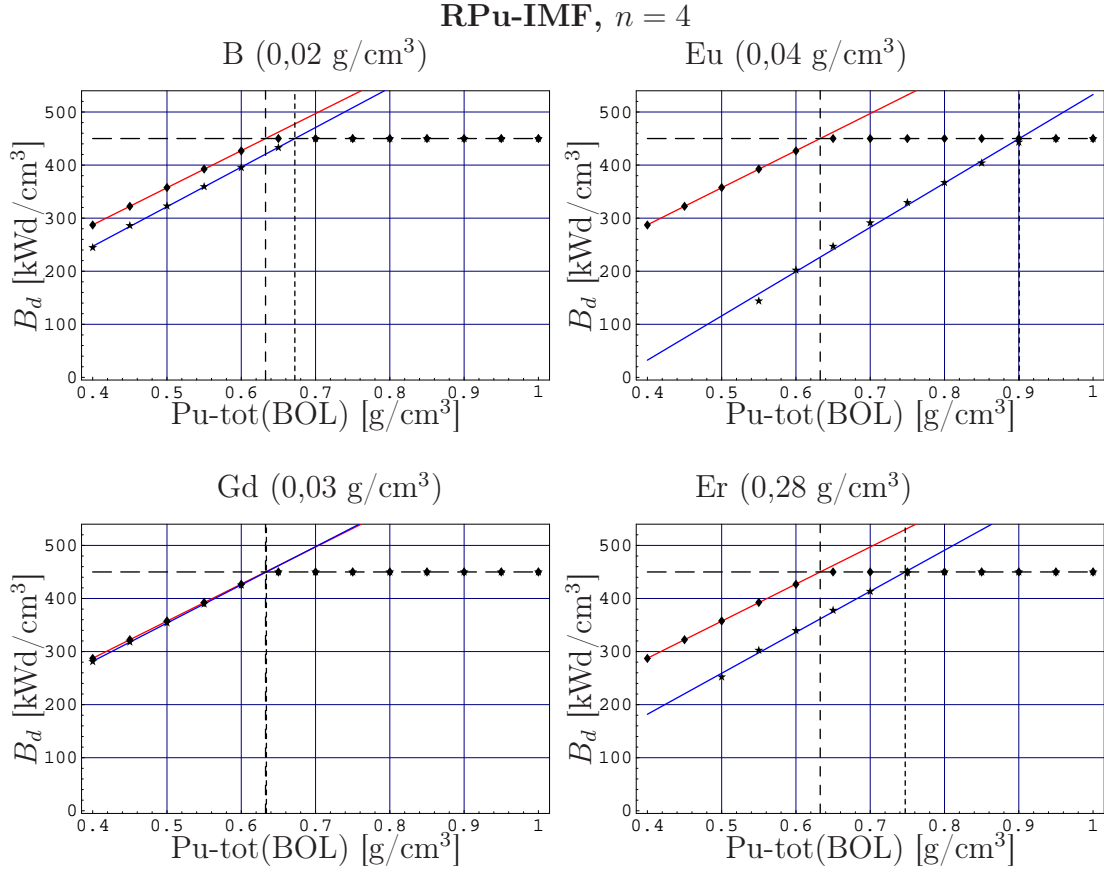


Abbildung 9.2: Maximal erreichbarer Entladeabbrand B_d für RPu-IMF in Abhängigkeit von der RPu-Konzentration für einen 4-Zyken-Abbrand. Alle Abbildungen enthalten die Kurve für RPu-IMF ohne BP (rot) und für RPu-IMF mit BP (blau). Die zum Erreichen eines Zielabbrands von 450 kWd/cm³ benötigte Pu-Konzentration ist jeweils durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet.

Dabei wird der Effekt der BP auf B_d sehr gut deutlich. So verändert sich die Steigung der Geraden, d. h. der pro zusätzlichem anfänglichem Plutonium erreichbare zusätzliche Abbrand praktisch nicht, die zum Erreichen eines vorgegebenen Zielabbrands notwendige Pu-Anfangskonzentration steigt jedoch in allen Fällen an. Dabei ist diese Differenz für Gadolinium am geringsten, da dieses bereits im ersten Zyklus (d. h. bis 112,5 kWd/cm³ Abbrand) fast vollständig seinen Effekt auf die Reaktivität des Brennstoffs verliert und damit bei der Bestimmung von B_d nach Gl. 6.6 keine Rolle mehr spielt. Der zum Erreichen eines Zielabbrands von 450 kWd/cm³ notwendige Pu-Anfangsgehalt steigt von 0,633 g/cm³ bei den reinen RPu-IMF lediglich auf 0,634 g/cm³ bei IMF mit 0,03 g/cm³ Gd. Bereits für die hier untersuchte Bor-Konzentration ist zum Erreichen desselben Abbrands ein Pu-Anfangsgehalt von 0,672 g/cm³ notwendig, für die betrachtete

¹²Für die genauen Rahmenbedingungen zur Bestimmung von B_d siehe Kapitel 6.

Er-Konzentration ein Wert von $0,747 \text{ g/cm}^3$ und bei Eu sogar bei $0,901 \text{ g/cm}^3$ (siehe Tabelle 9.8 für eine Zusammenfassung der zum Erreichen des jeweiligen Zielabbrands benötigten Pu-Anfangskonzentrationen).

Für die untersuchten WPu-IMF ergeben sich auch für den erreichbaren Entladeabbrand B_d keine qualitativen Unterschiede. Die zum Erreichen eines Zielabbrands von 450 kWd/cm^3 benötigte WPu-Anfangskonzentration steigt von $0,530 \text{ g/cm}^3$ bei einem Brennstoff ohne BP auf $0,538 \text{ g/cm}^3$ bei Verwendung von Gd, $0,567 \text{ g/cm}^3$ bei B, $0,617 \text{ g/cm}^3$ bei Er und $0,769 \text{ g/cm}^3$ bei der hier untersuchten Eu-Konzentration.

9.3 Variation der Anfangskonzentration ausgewählter BP

Im letzten Abschnitt wurde der Einfluss der bislang diskutierten BP auf den Reaktivitätsverlauf der untersuchten IMF und der daraus resultierende Effekt auf den erreichbaren Entladeabbrand B_d diskutiert. Natürlich kann dieser Effekt stark von der gewählten Anfangskonzentration des verwendeten BP abhängen, sofern nicht die gesamte Menge des BP im Laufe des ersten Bestrahlungszyklus umgesetzt wird und das BP damit seinen Einfluss auf die mittlere Reaktivität bei EOC verliert. Weiterhin ist von den verschiedenen BP ein je nach Anfangskonzentration unterschiedlich starker Einfluss auf die Bor-Wirksamkeit und damit, zusammen mit der Änderung der mittleren Anfangsreaktivität, auf den Bor-Bedarf c_B bei BOC zu erwarten. Da die Verwendung von BP wesentlich durch die Reduzierung des anfänglichen Bor-Bedarfs auf praktikable Werte begründet ist, muss daher auch die Abhängigkeit von c_B von der anfänglichen BP-Konzentration untersucht werden. Aufgrund des sehr hohen verbundenen Rechenzeitaufwands soll dies jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht für alle vier betrachteten BP durchgeführt werden. Vielmehr sollen an dieser Stelle zwei BP — Gadolinium und Erbium — ausgewählt werden, um an diesen exemplarisch den Einfluss der BP-Konzentration zu untersuchen.

Gadolinium ist als BP besonders von Interesse, da es den geringsten Einfluss auf den zu erwartenden Entladeabbrand B_d aufweist und daher diesbezüglich die optimalen erreichbaren Ergebnisse erwarten lässt. Erbium soll an dieser Stelle ausgewählt werden, obwohl es einen etwas höheren Einfluss auf B_d aufweist. Wie bereits oben begründet lässt Erbium als BP jedoch aufgrund seiner Eigenschaft als starker Resonanzabsorber positive Effekte hinsichtlich seiner Auswirkungen auf relevante Reaktivitätskoeffizienten, speziell den FTC, jedoch auch den MVC, erwarten (für eine ausführlichere Diskussion sei an dieser Stelle auf das nächste Kapitel verwiesen). Obwohl Bor als BP einen geringeren Einfluss auf B_d aufweist als Erbium soll es an dieser Stelle nicht weiter untersucht werden. Als rein thermischer Neutronenabsorber liegen seine prinzipiellen Eigenschaften nahe am Gadolinium, allerdings stellt es aufgrund der Heliumproduktion aus der (n,α) -Reaktion ein zusätzliches Problem dar, ohne spezifische Vorteile gegenüber Gd erwarten zu lassen. Europium schließlich weist einen so großen negativen Einfluss auf B_d auf, dass es als BP für

IMF nicht geeignet ist.¹³

In Tabelle 9.7 sind die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten BP-Konzentrationen für Erbium und Gadolinium zusammengefasst. Hierbei wurde einerseits versucht, einen breiten Bereich von Konzentrationen abzudecken, so dass sich für die untersuchten Abbrände von 300 kWd/cm³ bei $n = 3$ und 450 kWd/cm³ bei $n = 4$ eine geeignete Pu-BP-Kombination ergibt, welche zu einem tolerierbaren Bor-Bedarf bei BOC führt (siehe hierzu Abschnitt 9.7). Andererseits sollen die Abstände zwischen den untersuchten BP-Konzentrationen nicht zu übermäßig großen Unterschieden in den untersuchten Brennstoff-Kombinationen führen.

RPu-IMF					
Gd	0,03	0,06	0,09	0,12	[g/cm ³]
Er	0,15	0,20	0,28	0,40	[g/cm ³]
WPu-IMF					
Gd	0,02	0,04	0,08	0,12	[g/cm ³]
Er	0,25	0,40	0,55	0,70	[g/cm ³]

Tabelle 9.7: Untersuchte Konzentrationen der brennbaren Neutronengifte Erbium und Gadolinium für die IMF auf der Basis von RPu und WPu. Alle Angaben in [g/cm³].

Auch für diese unterschiedlichen BP-Konzentrationen wurden Abbrandrechnungen für alle oben definierten Pu-Anfangskonzentrationen durchgeführt. Im Folgenden werden einige repräsentative Ergebnisse dargestellt und diskutiert.

9.3.1 Reaktivitätsverlauf in Abhängigkeit von der gewählten BP-Konzentration

Die Auswirkungen der unterschiedlichen BP-Konzentrationen auf den Reaktivitätsverlauf der IMF sollen an dieser Stelle jeweils am Beispiel einer ausgewählten Pu-Konzentration für RPu-IMF bzw. WPu-IMF dargestellt werden. Dazu ist in Abbildung 9.3 der Verlauf von ρ_∞ für die RPu-IMF mit 0,65 g/cm³ Pu-Anfangsgehalt bzw. die WPu-IMF mit 0,55 g/cm³ Pu für alle unterschiedlichen BP-Konzentrationen dargestellt.¹⁴

Die Variation der Gadoliniumkonzentration führt zu starken Unterschieden in der Anfangsreaktivität ρ_0 der Brennstoffe, wobei die niedrigste gewählte Gd-Konzentration zu

¹³Diese Überlegungen basieren selbstverständlich auf der Annahme, dass bei vorgegebenem Pu-Anfangsgehalt ein möglichst hoher Entladeabbrand erreicht werden soll. Dies ist wiederum damit motiviert, dass bei vorgegebener Pu-Konzentration mit einem höheren erreichbaren Abbrand auch ein größerer Anteil des anfänglich eingebrachten Plutoniums abgebaut wird. Sofern dies nicht als wesentliches Ziel einer IMF-Strategie betrachtet wird, entfällt die Notwendigkeit eines möglichst effizienten BP-Einsatzes und andere Pu-BP-Kombinationen wären möglich.

¹⁴Diese Konzentrationen entsprechen etwa den für einen Zielabbrand von 450 kWd/cm³ ohne BP benötigten Pu-Konzentrationen.

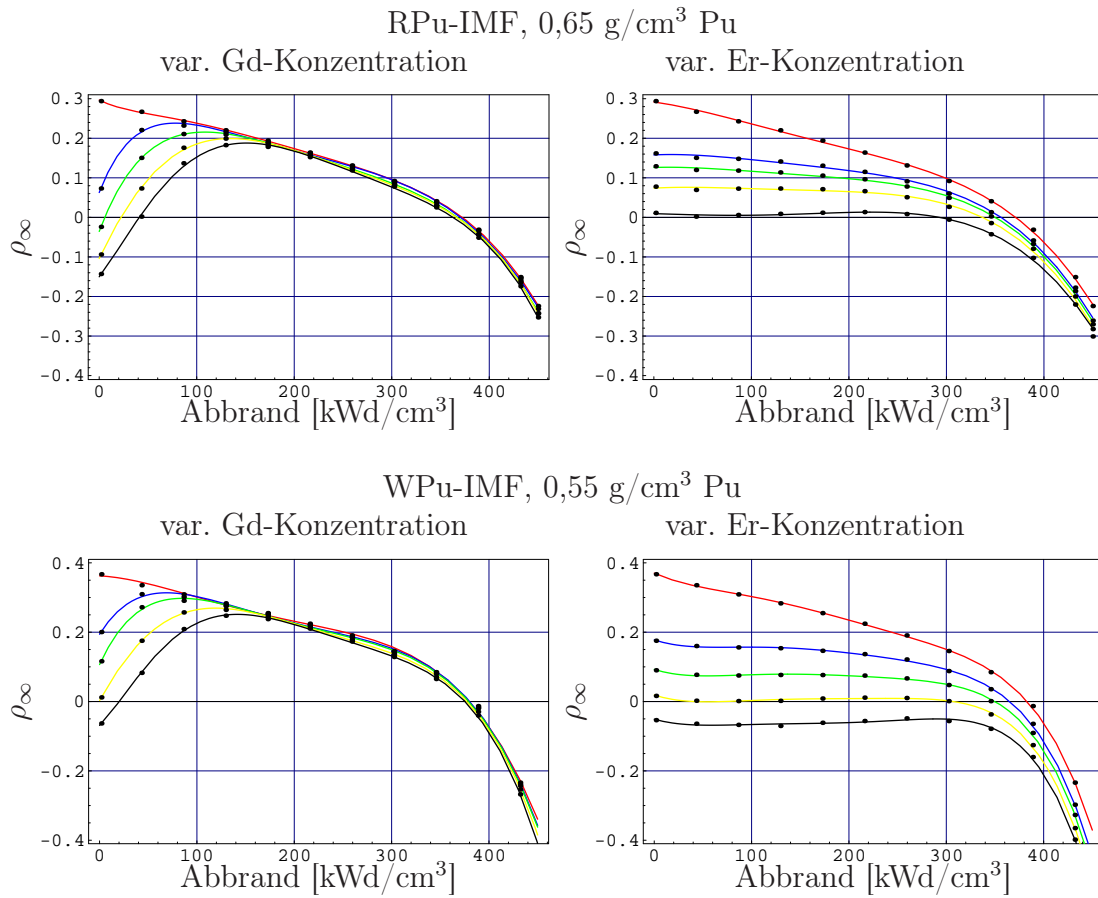


Abbildung 9.3: Entwicklung der Reaktivität ρ_∞ für Brennstoffe mit einer anfänglichen RPu-Konzentration von 0,65 g/cm³ (oben) bzw. WPU-Konzentration von 0,55 g/cm³ (unten). Die Kurven entsprechen IMF ohne BP (rot) bzw. steigenden BP-Konzentrationen (blau, grün, gelb, schwarz), für die zugehörigen BP-Konzentrationen siehe Tabelle 9.7.

einer Reaktivitätsminderung bei BOL von etwa $\Delta\rho_0 = 0,2$ führt, die höchste Gd-Konzentration sogar zu etwa $\Delta\rho_0 = 0,45$. Sowohl für die RPu- wie für WPU-IMF weist die niedrigste Gd-Konzentration nur bis ca. 80 kWd/cm³ einen Einfluss auf die Reaktivität des Brennstoffs auf, bei der höchsten untersuchten Gd-Konzentration demgegenüber ist bis ca. 150 kWd/cm³ eine Reduktion der Reaktivität feststellbar. Bei höheren Abbränden ist der Einfluss des eingebrachten Gd auf die Reaktivität bei allen Konzentrationen praktisch vernachlässigbar.

Für die unterschiedlichen Erbium-Konzentrationen ergibt sich ein etwas anderes Bild als bei der Verwendung von Gd. Die untersuchten Konzentrationen führen zu vergleichbaren Werten von ρ_0 , für die RPu-IMF ergeben sich Reaktivitätsdifferenzen von $\Delta\rho_0 = 0,15$ – $0,3$, bei den WPU-IMF liegen die Werte von $\Delta\rho_0$ bei 0,2–0,45. Für diese Brennstoffe ergibt sich jedoch — insbesondere für die hohen Er-Konzentrationen — ein über die ersten zwei Drittel des Abbrands nahezu konstanter Reaktivitätsverlauf, erst ab etwa 300 kWd/cm³ nimmt die Reaktivität wieder sehr stark mit dem Abbrand ab. Bei der höchsten Er-Konzentration im Falle der RPu-IMF und den beiden höchsten Konzen-

trationen im Falle der WPu-IMF liegt die Reaktivität sogar für den gesamten Abbrand unterhalb des für Neutronenverluste durch Leakage angenommenen Wertes von $\rho_L = 0,03$, so dass diese Pu-BP-Kombinationen keine ausreichende Reaktivität mehr für einen Einsatz im Reaktor aufweisen würden. Damit ergibt sich bei hohen Er-Konzentrationen eine Mindestkonzentration des anfänglichen Plutoniums, die überschritten werden muss, damit überhaupt eine ausreichende Reaktivität für den Einsatz eines solchen Brennstoffs vorhanden ist.

9.3.2 Erreichbarer Entladeabbrand B_d

In Abbildung 9.4 ist der mit den verschiedenen BP-Konzentrationen verbundene maximale Entladeabbrand B_d dargestellt. Dabei sind jeweils die Ergebnisse für einen Abbrand über vier Zyklen bei RPu-IMF bzw. WPu-IMF für alle Gd- bzw. Er-Konzentrationen dargestellt.

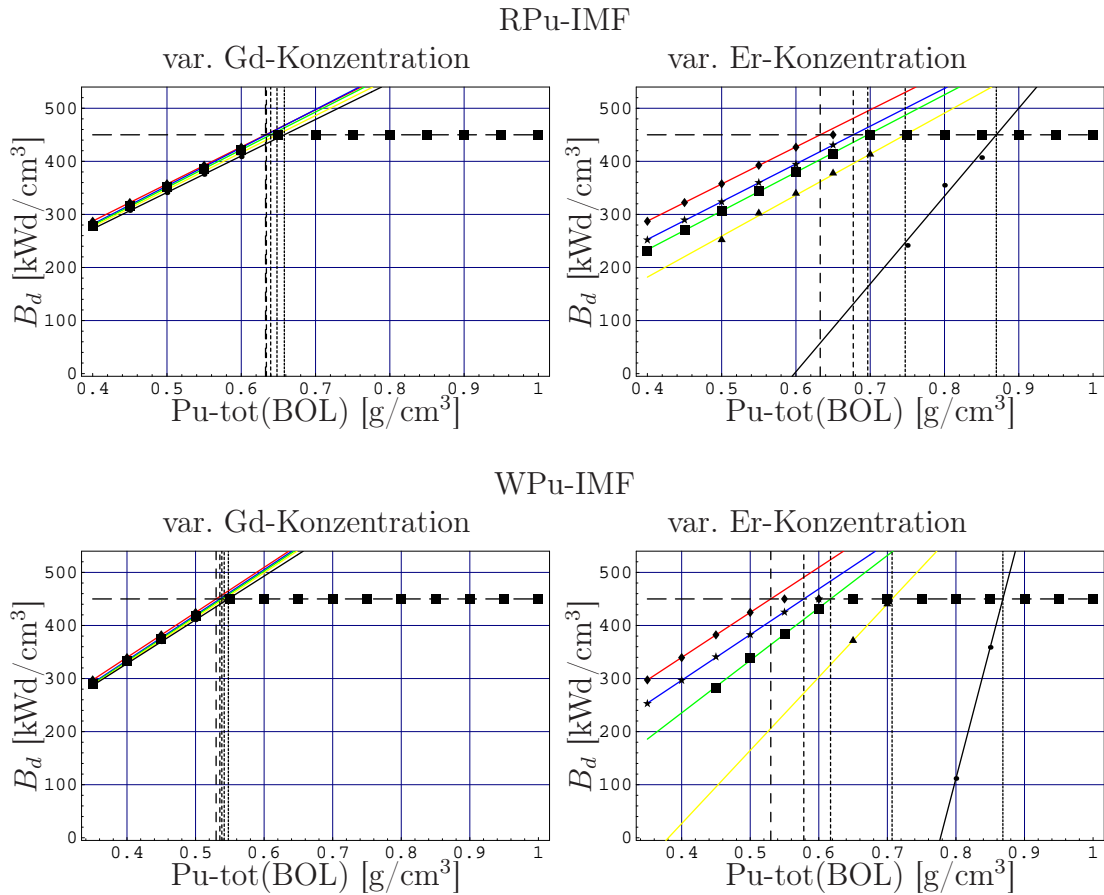


Abbildung 9.4: Erreichbarer Entladeabbrand B_d für IMF-Brennstoffe mit RPu (oben) bzw. WPu (unten) für einen 4-Zyklus-Abbrand. Die Kurven entsprechen IMF ohne BP (rot) bzw. steigenden BP-Konzentrationen (blau, grün, gelb, schwarz), für die zugehörigen BP-Konzentrationen siehe Tabelle 9.7. Die zum Erreichen eines Zielabbrands von 450 kWd/cm^3 benötigte Pu-Konzentration ist jeweils durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet.

Wie es aufgrund des schnellen Abbaus der Reaktivitätswirksamkeit des Gadolinium zu erwarten ist, zeigen praktisch alle verwendeten Gd-Konzentrationen nur einen marginalen Effekt auf B_d . Bei der höchsten untersuchten Gd-Konzentration von $0,12 \text{ g/cm}^3$ ist zum Erreichen des Zielabbrands von 450 kWd/cm^3 bei RPu-IMF mit $0,658 \text{ g/cm}^3$ eine um 4% höhere Pu-Anfangskonzentration notwendig wie bei den Brennstoffen ohne Gd, bei WPu-IMF werden mit $0,548 \text{ g/cm}^3$ sogar nur 3,4% mehr Pu benötigt.

Deutlich stärker hängt der erreichbare Abbrand von der verwendeten Er-Konzentration ab. Bereits die niedrigste untersuchte Konzentration von $0,15 \text{ g/cm}^3$ bei RPu bzw. $0,25 \text{ g/cm}^3$ bei WPu führt zu einer deutlichen Reduktion des mit einer vorgegebenen Pu-Konzentration erreichbaren Abbrands, so dass zum Erreichen des Zielabbrands bei RPu 7,0%, bei WPu-IMF 9,1% mehr anfängliches Pu benötigt werden. Bei den höheren Er-Konzentrationen tritt zudem der Effekt auf, dass es eine Mindestkonzentration des anfänglichen Plutoniums gibt, ab der die Brennstoffe überhaupt verwendet werden können.¹⁵ Dies ist wie im letzten Abschnitt beschrieben auf den sehr flachen Reaktivitätsverlauf der IMF mit Erbium zurückzuführen. Nur für Pu-Konzentrationen, welche größer als diese Mindestkonzentration sind, ergibt sich ein nutzbarer Brennstoff und damit ein erreichbarer Entladeabbrand B_d . Dies führt auch zu einer stärker nicht-linearen Abhängigkeit des Entladeabbrands vom Pu-Anfangsgehalt bei hohen Er-Konzentrationen.

9.4 Definition von Referenzbrennstoffen mit BP

In Tabelle 9.9 ist nun nochmals abschließend für alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Brennstoff-Typen, sowie alle betrachteten Anfangskonzentrationen der untersuchten brennbaren Neutronengifte, die bei vorgegebener Zykluszahl zum Erreichen eines der Zielabbrände von 300 bzw. 450 kWd/cm^3 benötigte Uran-Anreicherung bzw. der Pu-Anfangsgehalt zusammengefasst. Auch für die IMF mit BP soll im weiteren die bereits bei den Referenzbrennstoffen für MOX bzw. IMF ohne BP vorgenommene Einschränkung auf Brennstoffe mit einem Zielabbrand von 300 kWd/cm^3 bei $n = 3$ und 450 kWd/cm^3 bei $n = 4$ vorgenommen werden. Es wird hierzu davon ausgegangen, dass die in Tabelle 9.9 bestimmten Pu-Konzentrationen Mindestkonzentrationen darstellen, die zum Erreichen des spezifizierten Abbrands notwendig sind. Daher werden für die Definition der Referenzbrennstoffe diese Werte auf zwei signifikante Stellen aufgerundet, und damit in Tabelle 9.9 ein Satz von Referenzbrennstoffen definiert. Für diese wird im Folgenden die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit untersucht. Schließlich stellen diese Referenzbrennstoffe die Basis für die ausführliche Diskussion uranfreier Brennstoffe im Kapitel 10 dar.

¹⁵Bei der linearen Interpolation der bei vorgegebener Er-Konzentration für die verschiedenen Pu-Konzentrationen bestimmten Entladeabbrände wurden im Rahmen dieser Arbeit nur solche Pu-Konzentrationen berücksichtigt, für die der maximale Entladeabbrand größer als 100 kWd/cm^3 ist.

Pu-Anfangskonzentration und erreichbarer Entladeabbbrand B_d					
Zielabbbrand	300		450		[kWd/cm ³]
Zyklen	3	4	3	4	
Uran					
Uran	2,88	2,72	4,11	3,86	[% (U-235)]
MOX					
MOXR	3,44	3,23	5,16	4,82	[% (Pu-fis)]
MOXW	2,87	2,68	4,26	3,99	[% (Pu-fis)]
RPu					
RPu	0,436	0,418	0,655	0,633	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPBo (0,02 g(B)/cm ³)	0,482	0,471	0,693	0,672	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPEu (0,04 g(Eu)/cm ³)	0,741	0,721	0,931	0,901	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPEr (0,15 g(Er)/cm ³)	0,482	0,466	0,701	0,677	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,20 g(Er)/cm ³)	0,506	0,491	0,721	0,697	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,28 g(Er)/cm ³)	0,565	0,552	0,770	0,747	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,40 g(Er)/cm ³)	0,789	0,779	0,900	0,870	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPGd (0,03 g(Gd)/cm ³)	0,440	0,425	0,656	0,634	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,06 g(Gd)/cm ³)	0,442	0,429	0,661	0,640	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,09 g(Gd)/cm ³)	0,446	0,433	0,667	0,648	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,12 g(Gd)/cm ³)	0,451	0,440	0,678	0,658	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPu					
WPu	0,367	0,353	0,556	0,530	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPBo (0,03 g(B)/cm ³)	0,406	0,399	0,582	0,567	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPEu (0,06 g(Eu)/cm ³)	0,675	0,659	0,796	0,769	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPEr (0,25 g(Er)/cm ³)	0,416	0,404	0,596	0,578	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,40 g(Er)/cm ³)	0,474	0,465	0,633	0,617	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,55 g(Er)/cm ³)	0,605	0,598	0,719	0,707	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,70 g(Er)/cm ³)	0,847	0,840	0,894	0,868	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPGd (0,02 g(Gd)/cm ³)	0,369	0,360	0,555	0,535	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,04 g(Gd)/cm ³)	0,371	0,362	0,560	0,538	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,08 g(Gd)/cm ³)	0,376	0,365	0,565	0,542	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,12 g(Gd)/cm ³)	0,379	0,365	0,571	0,548	[g (Pu-tot)/cm ³]

Tabelle 9.8: Zusammenfassung der zum Erreichen eines vorgegebenen Entladeabbrands B_d bei einer Zykluszahl von $n = 3$ bzw. $n = 4$ benötigten U-235 bzw. Pu-Anfangskonzentration für alle untersuchten Brennstoff-Typen.

Referenzbrennstoffe (mit BP)			
Zielabbrand	300	450	[kWd/cm ³]
Zyklen	$n = 3$	$n = 4$	
Uran			
Uran	2,9	3,9	[% (U-235)]
MOX			
MOXR	3,5	4,9	[% (Pu-fis)]
MOXW	2,9	4,0	[% (Pu-fis)]
RPu-IMF			
RPu	0,44	0,64	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPBo (0,02 g(B)/cm ³)	0,49	0,68	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPEu (0,04 g(Eu)/cm ³)	0,75	0,91	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPEr (0,15 g(Er)/cm ³)	0,49	0,68	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,20 g(Er)/cm ³)	0,51	0,70	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,28 g(Er)/cm ³)	0,57	0,75	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,40 g(Er)/cm ³)	0,79	0,87	[g (Pu-tot)/cm ³]
RPGd (0,03 g(Gd)/cm ³)	0,44	0,64	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,06 g(Gd)/cm ³)	0,45	0,64	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,09 g(Gd)/cm ³)	0,45	0,65	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,12 g(Gd)/cm ³)	0,46	0,66	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPu-IMF			
WPu	0,37	0,53	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPBo (0,03 g(B)/cm ³)	0,41	0,57	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPEu (0,06 g(Eu)/cm ³)	0,68	0,77	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPEr (0,25 g(Er)/cm ³)	0,42	0,58	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,40 g(Er)/cm ³)	0,48	0,62	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,55 g(Er)/cm ³)	0,61	0,71	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,70 g(Er)/cm ³)	0,85	0,87	[g (Pu-tot)/cm ³]
WPGd (0,02 g(Gd)/cm ³)	0,37	0,54	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,04 g(Gd)/cm ³)	0,38	0,54	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,08 g(Gd)/cm ³)	0,38	0,55	[g (Pu-tot)/cm ³]
(0,12 g(Gd)/cm ³)	0,38	0,55	[g (Pu-tot)/cm ³]

Tabelle 9.9: Auswahl der Referenzbrennstoffe für einen Zielabbrand von 300 kWd/cm³ bei $n = 3$ und 450 kWd/cm³ bei $n = 4$ bei allen betrachteten Brennstoffen und BP-Konzentrationen.

9.5 Mittlere Anfangsreaktivität und Bor-Bedarf für IMF mit BP

Die wesentliche Funktion der verwendeten brennbaren Neutronengifte besteht darin, die zur Kompensation der anfänglichen Überschussreaktivität benötigte Bor-Konzentration auf praktikable Werte zu reduzieren. Daher ist, wie bereits oben für die MOX- bzw. IMF-Referenzbrennstoffe diskutiert, neben dem Reaktivitätsverlauf und den Auswirkungen auf den erreichbaren Abbrand die sich ergebende mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ zusammen mit der mittleren Bor-Wirksamkeit $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ ausschlaggebend für die Einsetzbarkeit einer konkreten Brennstoffzusammensetzung. Diese werden nun für die bislang diskutierten Brennstofftypen vergleichend dargestellt.

9.5.1 Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$

In Abbildung 9.5 ist die mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ für die untersuchten RPu-Brennstoff-Kombinationen für $n = 4$ dargestellt. Wie bereits in Kapitel 7.2.3 diskutiert, kann sinnvollerweise jeweils in den Bereich von Pu-Anfangskonzentrationen unterhalb der zum Erreichen des Zielabbrands von 450 kWd/cm^3 benötigten Konzentrationen und den Bereich darüber unterschieden werden. Die entsprechenden Bereiche sind wiederum durch gestrichelte Linien gekennzeichnet.

Vergleicht man die Werte von $\rho_{av}(\text{BOC})$ für RPu und RPBo-IMF mit gleicher Pu-Konzentration, so führt die untersuchte Bor-Konzentration von $0,02 \text{ g/cm}^3$ im Bereich der hohen Pu-Konzentrationen zu einem $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ von etwa 0,1, entsprechend einer Wirksamkeit von ca. $5,0 (\text{g/cm}^3)^{-1}$ Bor. Dabei wird hier und im Folgenden unter $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ die Differenz der mittleren Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ von zwei Brennstoffen mit gleichem anfänglichem Pu-Gehalt, jedoch unterschiedlicher BP-Konzentration verstanden werden. Bei niedrigen Pu-Anfangskonzentrationen steigt $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ bis auf ca. 0,15 an. Dies ist darauf zurückzuführen, dass bei den geringen Pu-Konzentrationen der erreichbare Entladeabbrand und damit auch die verbundene maximale Zykluslänge abnimmt.¹⁶ Da das anfänglich enthaltene Bor die Reaktivität der Brennstoffe bis ca. 150 kWd/cm^3 im Vergleich zu den RPu-IMF ohne Bor deutlich reduziert (siehe Abbildung 9.1), ist bei abnehmender Zykluslänge (kleiner $112,5 \text{ kWd/cm}^3$) insbesondere die Reaktivität des für einen Zyklus bestrahlten Brennstoffs noch deutlich geringer als für den Brennstoff ohne Bor. Vergleicht man die Referenzbrennstoffe RPu064 und RPBo06820, so geht $\rho_{av}(\text{BOC})$ von 0,182 auf 0,088 zurück.

Ein ähnlicher Effekt ergibt sich für die untersuchte Europium-Konzentration von $0,04 \text{ g/cm}^3$. Hier ergibt sich — bedingt durch das geringe Ausbrennen des anfänglichen Europiums — ein $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ von etwa 0,15 für hohe Pu-Konzentrationen entsprechend $3,75 (\text{g/cm}^3)^{-1}$ Europium. Dagegen ergibt sich wie bei allen untersuchten BP für niedrige Pu-Konzentrationen eine stärkere Abnahme von $\rho_{av}(\text{BOC})$, bedingt durch die geringere

¹⁶Zum Erreichen des vorgegebenen Zielabbrands von 450 kWd/cm^3 ergibt sich bei $n = 4$ eine Zykluslänge von $112,5 \text{ kWd/cm}^3$.

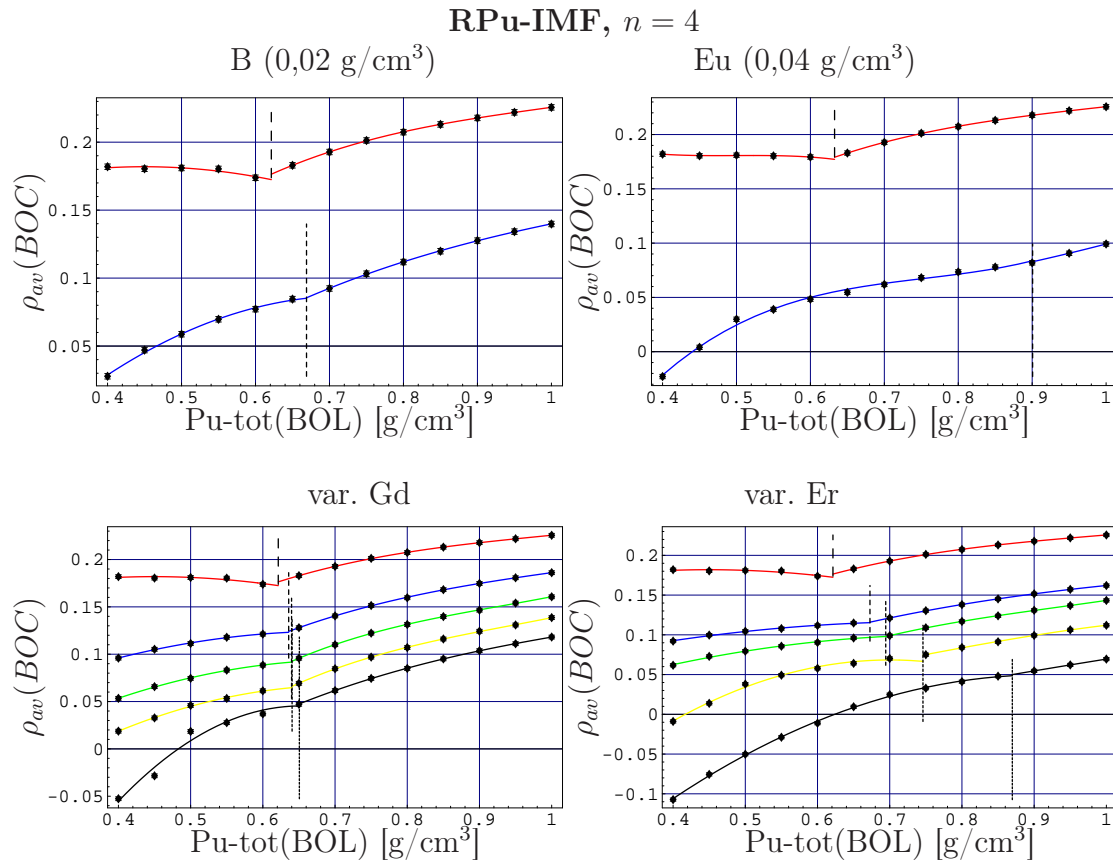


Abbildung 9.5: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(BOC)$ für RPu-IMF-Brennstoffe für einen Abbrand über vier Zyklen.

Alle Abbildungen enthalten die Kurve für RPu (rot) und zusätzlich: Bor, 0,02 g/cm³ (oben, links, blau), Europium, 0,04 g/cm³ (oben, rechts, blau), verschiedene Konzentrationen von Gadolinium (unten links) sowie Erbium (unten rechts) nach Tabelle 9.7, wobei zunehmende Konzentrationen einer geringeren Anfangsreaktivität entsprechen (blau, grün, gelb, schwarz).

erreichbare Zykluslänge. Im Fall von Europium beläuft sich $\Delta\rho_{av}(BOC)$ bei der niedrigsten Pu-Konzentration von 0,4 g/cm³ auf etwa 0,2. Um den stärkeren Reaktivitätsverlust bei der Verwendung von Europium auszugleichen, ist eine deutlich höhere Pu-Konzentration zum Erreichen des Zielabbrands von 450 kWd/cm³ notwendig. Vergleicht man daher die Referenzbrennstoffe RPu064 und RPEu09140, so nimmt $\rho_{av}(BOC)$ lediglich von 0,182 auf 0,082 ab, die Reaktivitätsdifferenz bezogen auf die Referenzbrennstoffe ist also vergleichbar zum untersuchten Brennstoff mit Bor als BP.

Die vier betrachteten Gadolinium-Konzentrationen liefern Werte für $\Delta\rho_{av}(BOC)$ von 0,06, 0,09, 0,11 und 0,14. Damit ist die Wirksamkeit des BP Gadolinium selbst stark von der Gd-Konzentration abhängig, es ergeben sich Werte von 1,9, 1,5, 1,3 bzw. 1,1 (g/cm³)⁻¹ Gadolinium. In dieser Abhängigkeit der Effizienz des Gadolinium von der Gd-Konzentration spiegelt sich die starke energetische Selbstabschirmung des Gadolinium. Wie oben diskutiert nimmt mit zunehmender Gd-Konzentration der thermische Fluss in den Brennstäben stark

ab, was wiederum die Wirksamkeit des Gadolinium als thermischer Neutronenabsorber im Vergleich zum Plutonium reduziert. Bei der Verwendung von Gadolinium ist zum Erreichen des Zielabbrands nur eine geringfügige Erhöhung der Pu-Anfangskonzentration notwendig. Es ergibt sich für die Referenzbrennstoffe RPGd06430, RPGd06460, RPGd06590 und RPGd066120 eine Abnahme von $\rho_{av}(\text{BOC})$ gegenüber RPu064 um 0,056, 0,087, 0,113 bzw. 0,132. Obwohl die höchste Gd-Konzentration um einen Faktor vier über der niedrigsten liegt, wird damit lediglich eine um ca. einen Faktor zwei höhere Reduktion von $\rho_{av}(\text{BOC})$ erzielt.

Bei den vier untersuchten Erbium-Konzentrationen ergeben sich Differenzen $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ zwischen den Werten der RPu-IMF ohne BP und den RPer-IMF Werten von 0,07, 0,09, 0,13 und 0,19 (ebenfalls gemittelt über alle Pu-Anfangskonzentrationen). Dies entspricht einer Abnahme von $\rho_{av}(\text{BOC})$ von ca. $0,47 \text{ (g/cm}^3\text{)}^{-1}$ Erbium, praktisch unabhängig von der verwendeten Erbium-Konzentration. Bei Erbium ist zum Erreichen des Zielabbrands eine jeweils etwas erhöhte Pu-Anfangskonzentration notwendig, so dass sich für die Referenzbrennstoffe RPer06815, RPer07020, RPer07528 und RPer08740 eine Reaktivitätsdifferenz bei BOC bezogen auf RPu064 von 0,062, 0,083, 0,107 bzw. 0,131 ergibt. Eine Zusammenfassung der mittleren Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$ für alle Referenzbrennstoffe, insbesondere auch für einen Abbrand über drei Zyklen, findet sich nach der Diskussion der abbrandabhängigen Bor-Wirksamkeit in Tabelle 9.10.

Für die WPu-Brennstoffe ergibt sich, wie in Abbildung 9.6 dargestellt, ein ähnliches Bild bzgl. der Abhängigkeit der mittleren Anfangsreaktivität von den verwendet BP.

Eine Konzentration von $0,03 \text{ g/cm}^3$ Bor führt zu einer Abnahme der Anfangsreaktivität $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ von im Mittel 0,15, dies entspricht einer Wirksamkeit des Bor von $5,0 \text{ (g/cm}^3\text{)}^{-1}$ entsprechend dem Wert bei den RPu-Brennstoffen. Der größte Effekt bei dieser verwendeten Bor-Konzentration ergibt sich bei der niedrigsten untersuchten Pu-Konzentration von $0,35 \text{ g/cm}^3$, hier beläuft sich die Differenz in $\rho_{av}(\text{BOC})$ auf etwa 0,23. Beim Vergleich der Referenzbrennstoffe WPu053 und WBo05730 liegt der Unterschied in $\rho_{av}(\text{BOC})$ bei 0,14.

Für die Europium-Konzentration von $0,06 \text{ g/cm}^3$ ergibt sich ein mittlerer Reaktivitätsverlust $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ von 0,21, entsprechend einer Wirksamkeit von $3,46 \text{ (g/cm}^3\text{)}^{-1}$ Europium, d. h. einer etwas geringeren Wirksamkeit als bei den RPu-Brennstoffen. Die maximale Abweichung von $\rho_{av}(\text{BOC})$ ergibt sich wiederum bei der WPu-Konzentration von $0,35 \text{ g/cm}^3$ und beläuft sich auf ca. 0,3. Demgegenüber beträgt beim Vergleich der Referenzbrennstoffe WPu053 und WPEu07760 aufgrund der deutlich höheren zum Erreichen des Zielabbrands notwendigen WPu-Konzentration die Differenz von $\rho_{av}(\text{BOC})$ mit 0,16 etwas weniger als die mittlere Differenz der Anfangsreaktivitäten bei gleicher WPu-Konzentration.

Bei den vier hier gewählten Gd-Konzentrationen ergeben sich für WPu $\Delta\rho_{av}(\text{BOC})$ -Werte von 0,04, 0,06, 0,10 und 0,13 entsprechend einer konzentrationsabhängigen Wirksamkeit des Gd von 1,9, 1,5, 1,2 bzw. $1,1 \text{ (g/cm}^3\text{)}^{-1}$. Damit ergibt sich bei den WPu-Brennstoffen eine vergleichbare Bandbreite der Gd-Wirksamkeit wie bei den untersuchten RPu-Brennstoffen. Auch bei den WPGd-IMF ist ebenso wie bei den RPGd-IMF nur eine geringfügig erhöhte Pu-Konzentration zum Erreichen des selben Zielabbrands wie oh-

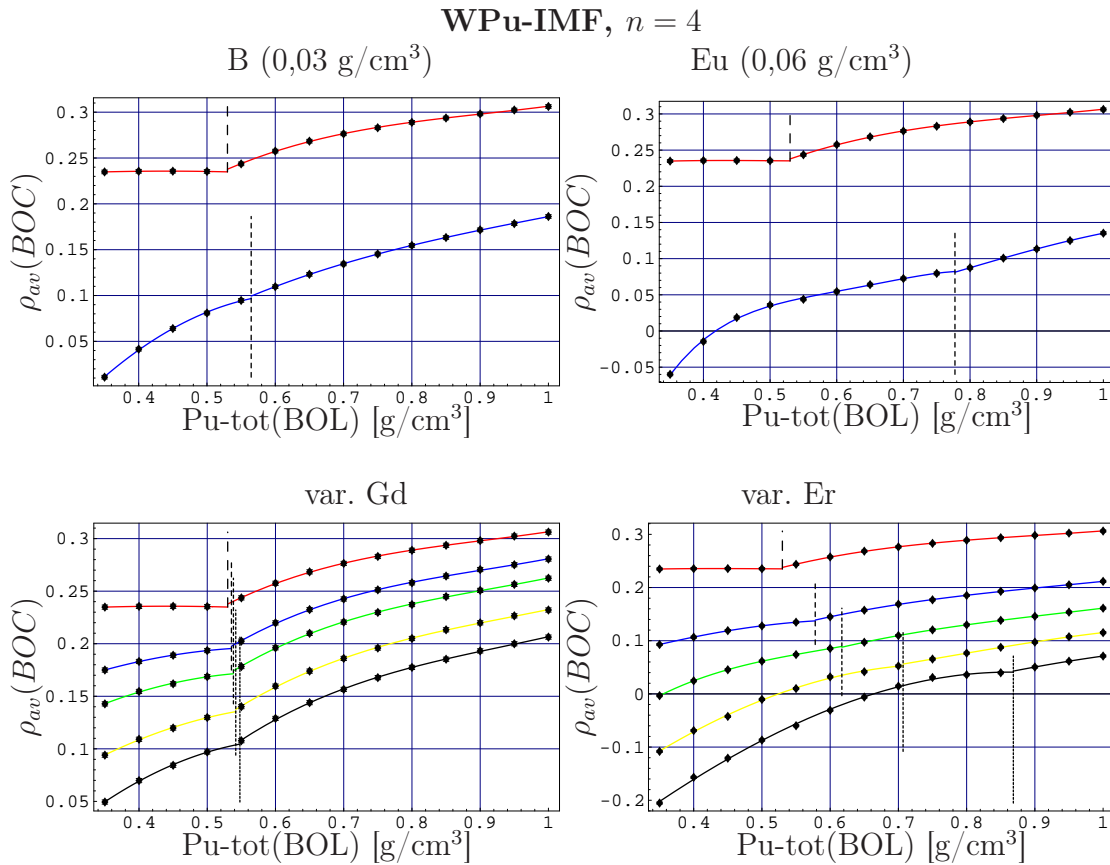


Abbildung 9.6: Mittlere Anfangsreaktivität $\rho_{av}(BOC)$ für WPu-IMF-Brennstoffe für einen 4-Zyklen-Abbrand.

Alle Abbildungen enthalten die Kurve für WPu (rot) und zusätzlich: Bor, 0,03 g/cm³ (oben, links, blau), Europium, 0,06 g/cm³ (oben, rechts, blau), verschiedenen Konzentrationen von Gadolinium (unten links) sowie Erbium (unten rechts) nach Tabelle 9.7, wobei zunehmende Konzentrationen einer geringeren Anfangsreaktivität entsprechen (blau, grün, gelb, schwarz).

ne Gd im Brennstoff notwendig. Für die Referenzbrennstoffe WPGd05420, WPGd05440, WPGd05580 und WPGd055120 ergeben sich Unterschiede der mittleren Anfangsreaktivität zu WPu053 von 0,040, 0,064, 0,102 und 0,133. Damit führt eine Versechsfachung der Gd-Konzentration von 0,02 g/cm³ auf 0,12 g/cm³ nur zu einer um etwa einen Faktor drei höheren Reduktion der Anfangsreaktivität.

Schließlich ergeben sich für die vier untersuchten Er-Konzentrationen Unterschiede in $\Delta\rho_{av}(BOC)$ von 0,11, 0,17, 0,24 und 0,29 zu den Brennstoffen ohne Erbium. Bei den WPu-Brennstoffen weisen die verschiedenen Er-Konzentrationen damit eine leichte Abhängigkeit der Er-Wirksamkeit von der Er-Konzentration auf, es ergeben sich Werte von 0,44, 0,43, 0,43 und 0,42 (g/cm³)⁻¹ für die Wirksamkeit des Er. Die mittleren Anfangsreaktivitäten der Referenzbrennstoffe WPER05820, WPER06240, WPER07155 und WPER08770 weichen von WPu053 um 0,100, 0,151, 0,186 bzw. 0,197 ab. Obwohl die Er-Wirksamkeit für die verschiedenen Er-Konzentrationen noch nahezu konstant ist, führt auch hier die

zum Erreichen des Zielabbrands notwendige Erhöhung der Pu-Anfangskonzentration zu einer nur um einen Faktor zwei höheren Abnahme der Anfangsreaktivität bei einer Erhöhung der Er-Konzentration um einen Faktor 3,5.

9.5.2 Bor-Wirksamkeit für IMF mit BP

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der verschiedenen BP auf die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit $BWC(t)$ diskutiert (vergleiche hierzu auch Abschnitt 8.2). Dabei soll die Diskussion an dieser Stelle zunächst auf die Brennstoffe mit hohem Zielabbrand (450 kWd/cm^3 , $n = 4$) beschränkt werden, da an diesen die wesentlichen, durch die verschiedenen BP bedingten Unterschiede im abbrandabhängigen Verlauf des BWC deutlich gemacht werden können. Eine quantitative Diskussion der mittleren Bor-Wirksamkeit bei BOL und des daraus folgenden Bor-Bedarfs folgt dann für alle in Tabelle 9.4 definierten Referenzbrennstoffe im nächsten Abschnitt.

In Abbildung 9.7 ist $BWC(t)$ für die Referenzbrennstoffe auf RPu-Basis mit den vier verschiedenen untersuchten BP — jeweils im Vergleich zum Referenzbrennstoff RPu064 ohne BP — dargestellt. Alle Brennstoffe weisen eine dem reinen RPu-IMF vergleichbare Abbrandabhängigkeit des BWC auf. Zwei prinzipielle Unterschiede können festgestellt werden. Bei BOL führt eine höhere Pu-Anfangskonzentration und eine hohe Konzentration eines thermischen Absorbers (besonders deutlich am Beispiel des Gadoliniums) zu einem gegenüber RPu064 um 10%–30% weniger negativen Wert des BWC. Bei EOL ist der BWC im Wesentlichen über die verbleibende Pu-Menge bestimmt und damit — bei vorgegebenem Abbrand — um so stärker negativ, je weniger anfängliches Pu benötigt wird. Da an dieser Stelle jeweils Brennstoffe mit gleichem Zielabbrand untersucht werden, ergibt sich bei einer erhöhten anfänglichen Pu-Konzentration auch eine entsprechend erhöhte verbleibende Pu-Menge im abgebrannten Brennstoff, da die bei einem festen Abbrand pro Volumen erzeugte Energie einer konstanten Menge an im Verlaufe des Abbrands gespaltenem Plutonium entspricht. Bei RPu064 verbleiben von $0,64 \text{ g/cm}^3$ anfänglichem Pu noch ca. $0,15 \text{ g/cm}^3$ mit Erreichen des Zielabbrands. Beträgt die Anfangskonzentration demgegenüber bspw. $0,7 \text{ g/cm}^3$ wie bei RPEr07020, also 10% mehr als für den reinen RPu-IMF, so verbleiben bei EOL noch ca. $0,21 \text{ g/cm}^3$, da die selbe Pu-Menge im Verlauf des Abbrands zur Energieerzeugung gespalten wird. Damit ist die Pu-Konzentration bei EOL für RPEr07020 noch um 40% größer als im RPu-Fall, was zu einem dementsprechend weniger negativen BWC führt.

Für RPBo06820 liegen die Werte von $BWC(BOL)$ bei $-2,2 \text{ pcm/ppm}$. Aufgrund der starken Pu-Reduktion steigt die Bor-Wirksamkeit bis EOL wie bei RPu064 sehr stark an, $BWC(EOL)$ liegt bei -14 pcm/ppm . Damit ist $BWC(BOL)$ nur um etwa 8% weniger negativ als beim reinen RPu-IMF ($-2,4 \text{ pcm/ppm}$), bei EOL ist der Wert des BWC jedoch noch um fast ein Drittel weniger negativ als bei RPu064 (-22 pcm/ppm).

Noch ausgeprägter ist dieser Effekt bei Verwendung von Europium als BP. Hier wird zum Erreichen des selben Zielabbrands wie bei RPu-IMF eine deutlich höhere Pu-Anfangskonzentration benötigt. Zusammen mit dem anfänglich enthaltenen Europium,

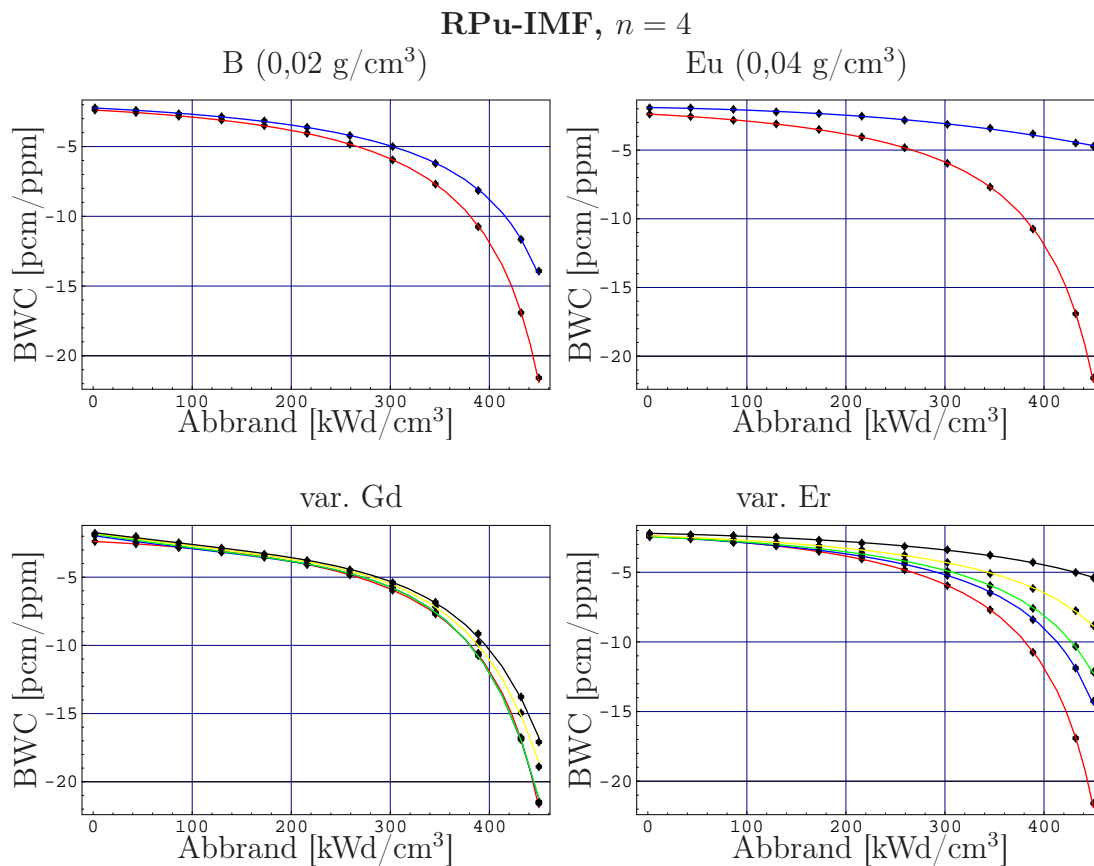


Abbildung 9.7: Abbrandabhängigkeit der Bor-Wirksamkeit (BWC) für die RPu-Referenzbrennstoffe mit Zielabbrand 450 kWd/cm^3 ($n = 4$).

Alle Abbildungen enthalten die Kurve für RPu064 (rot) und zusätzlich: RPBo06820 (blau, oben, links), RPEu09140 (blau, oben rechts), verschiedene Konzentrationen von Gadolinium, RPGd06430, RPGd06460, RPGd06590 und RPGd066120 (unten links) sowie Erbium, RPER06815, RPER07020, RPER07528 und RPER08740 (unten rechts) nach Tabelle 9.9, wobei zunehmende Konzentrationen zu weniger negativen Werten des BWC führen.

dass zusätzlich eine Härtung des Neutronenspektrums bewirkt, liegen die Werte von BWC(BOL) damit bei $-1,9 \text{ pcm/ppm}$ für RPEu09140 und sind somit etwa 20% weniger negativ als bei RPu064. Auch nimmt der Wert des BWC für RPEu09140 im Laufe des Abbrands nicht so stark ab wie bei den RPu-IMF, so beträgt BWC(EOL) noch $-4,7 \text{ pcm/ppm}$, und ist damit um ca. einen Faktor fünf weniger negativ als bei RPu064.

Für die beiden BP Gadolinium und Erbium ist die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit für alle vier untersuchten BP-Konzentrationen dargestellt. Die RPGd-IMF zeigen dabei einen dem reinen RPu-IMF nahezu identischen Verlauf des BWC mit einem sehr ausgeprägten Abfall im letzten Drittel des Abbrands. Bei BOL sind die Werte des BWC jedoch — abhängig von der verwendeten Gd-Konzentration — um ca. 15%–25% ($-2,0 \text{ pcm/ppm}$ bei RPGd06430 bis $-1,8 \text{ pcm/ppm}$ bei RPGd066120) weniger negativ als bei RPu064. Für die beiden RPGd-IMF mit niedriger Gd-Konzentration, welche den gleichen Pu-Anfangsgehalt wie RPu064 aufweisen, entspricht der Wert des BWC bei EOL prak-

tisch demjenigen von RPu064.¹⁷ Für die beiden Referenzbrennstoffe mit höherer Gd-Konzentration und damit verbundener etwas erhöhter anfänglicher Pu-Konzentration ergeben sich auch bei EOL noch um ca. 10%–20% weniger negative Werte des BWC.

Der geringste Einfluss auf die Bor-Wirksamkeit bei BOL kann bei den verschiedenen Erbium-Konzentrationen verzeichnet werden. Für die niedrigste Er-Konzentration bei RPER06815 ist BWC(BOL) im Rahmen der statistischen Genauigkeit gleich groß wie bei RPu064, mit steigender Konzentration wächst die Differenz zwischen den RPER-Referenzbrennstoffen und RPu064 bis auf lediglich ca. 8% an (–2,2 pcm/ppm bei RPER08740). Auch bei diesen Brennstoffen steigen die Abweichungen im Laufe des Abbrands zwischen den Werten des BWC von RPu064 und den jeweiligen Referenzbrennstoffen mit zunehmender Er-Konzentration aufgrund des höheren Pu-Anfangsbedarfs stark an. So liegt der Wert von BWC(EOL) für RPER06815 mit –14,3 pcm/ppm um ca. 35% über demjenigen von RPu064, beim Brennstoff mit der höchsten Er-Konzentration RPER08740 beträgt die Abweichung mit –5,4 pcm/ppm bereits einen Faktor vier.

In Abbildung 9.8 ist schließlich für einen Brennstoff-Typ der sich ergebende Verlauf der mittleren Bor-Wirksamkeit BWC_{av} über einen Zyklus von 112,5 kWd/cm³ Länge am Beispiel der Referenzbrennstoffe RPu064 und der vier RPER-IMF RPER06815, RPER07020, RPER07528 und RPER08740 dargestellt. Für RPu064 ergibt sich ein BWC_{av} (BOC) von –4,2 pcm/ppm. Bei den RPER-IMF steigt der Wert von BWC_{av} (BOC) mit zunehmender Er-Konzentration von –3,9 pcm/ppm bei RPER06815 auf –2,8 pcm/ppm bei RPER08740. Damit ist die Bor-Wirksamkeit für den Referenzbrennstoff mit der höchsten Er-Konzentration gerade etwas geringer als beim MOX-Brennstoff mit gleichem Zielabbrand, MOXR49, mit –3,0 pcm/ppm.

Für RPu064 ändert sich BWC_{av} von BOC bis EOC um ca. einen Faktor zwei (–4,2 pcm/ppm auf –9 pcm/ppm), mit zunehmendem Er-Gehalt und dadurch bedingter höherer Pu-Anfangskonzentration nimmt die abbrandbedingte Änderung von BWC_{av} stark ab. Für RPER08740 fällt BWC_{av} bis EOC lediglich auf –3,6 pcm/ppm, ändert sich also lediglich um 30%.

Für die Brennstoffe auf WPu-Basis ergibt sich eine den RPu-IMF äquivalente Situation, welche in Abbildung 9.9 dargestellt ist. Dabei ist die Änderung des BWC für WPu053 in den letzten 50 kWd/cm³ Abbrand aufgrund des besonders hohen relativen Abbrands nochmals bedeutend stärker als bei RPu064, so dass die bei den WPu-IMF auftretenden Unterschiede insbesondere bei EOL noch größer sind als bei den RPu-IMF.¹⁸

¹⁷Da der Einfluss des Gadolinium auf die Reaktivität nach ca. 150 kWd/cm³ praktisch vernachlässigbar ist und die selbe Pu-Anfangskonzentration verwendet werden kann wie im Fall ohne BP kann sich die Verwendung des BP bei EOL lediglich noch dadurch auswirken, dass zu Beginn des Abbrands ein deutlich härteres Neutronenspektrum vorliegt. Dies führt jedoch lediglich zu geringen Unterschieden im Aufbau der schwereren Pu-Isotope (wenige Prozent), was sich praktisch nicht auf die Bor-Wirksamkeit bei EOL auswirkt.

¹⁸Es sei an dieser Stelle nochmals explizit darauf hingewiesen, dass die im Rahmen dieser Arbeit berechneten Werte des BWC mittels Zell-Rechnungen bestimmt wurden. Insbesondere für Brennstoffe mit einer sehr geringen absoluten Konzentration von Plutonium würden sich jedoch sehr große mittlere freie Weglängen für die Neutronen ergeben. Dies würde entsprechend zu einer stärkeren Kopplung von benachbarten Brennelementen im Kern führen, so dass letztlich die Neutronen durch Leckage von Brennelemen-

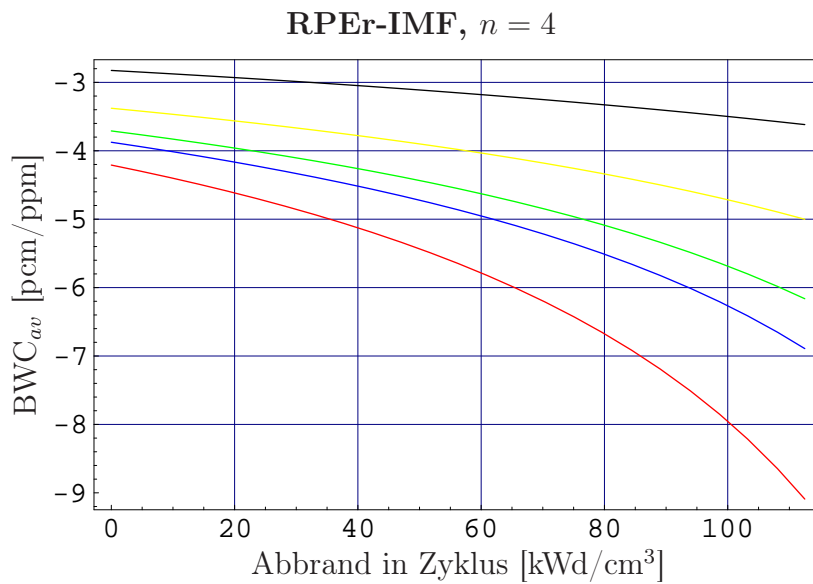


Abbildung 9.8: Mittlere Bor-Wirksamkeit BWC_{av} während eines Zyklus von $112,5 \text{ kWd/cm}^3$ Zykluslänge für RPU064 und die RPEr-Referenzbrennstoffe RPEr06815, RPEr07020, RPEr07528 und RPEr08740 mit Zielabbrand 450 kWd/cm^3 ($n = 4$). Brennstoffe mit zunehmender BP-Konzentration weisen weniger negative Werte von BWC_{av} auf.

Bei WPBo05730 ist $BWC(BOL)$ mit $-2,3 \text{ pcm/ppm}$ gleich groß wie bei WPU053. Bis EOL steigt die Bor-Wirksamkeit jedoch nur auf -24 pcm/ppm an und liegt damit um etwa einen Faktor drei unter derjenigen des reinen WPU-IMF. Bei WPEu07760 ergibt sich bereits bei BOL ein Wert des BWC von $-2,0 \text{ pcm/ppm}$, d. h. eine um ca. 13% geringere Bor-Wirksamkeit. Bei EOL liegt der Wert des BWC noch bei $-5,1 \text{ pcm/ppm}$, wäre also über einen Faktor 13 geringer als bei WPU053.

Auch bei WPU führt Gadolinium bereits zu BOL wie im Falle der RPU-IMF zu weniger negativen Werten des BWC. Bereits für die niedrigste hier untersuchte Gd-Konzentration ist $BWC(BOL)$ mit $-2,0 \text{ pcm/ppm}$ um 13% weniger negativ, bei der höchsten untersuchten Konzentration ergibt sich mit $-1,8 \text{ pcm/ppm}$ sogar eine Abweichung von 22%. Bei EOL liegen die Werte des BWC zwischen -48 pcm/ppm beim Referenzbrennstoff mit $0,02 \text{ g/cm}^3$ Gd und bei -30 pcm/ppm für den Brennstoff mit $0,12 \text{ g/cm}^3$ Gd.

Der Einfluss von Erbium auf die Werte von $BWC(BOL)$ ist wiederum stark abhängig von der verwendeten Konzentration. Für die niedrigste hier untersuchte Konzentration des Erbium (und die damit verbundene, nur geringfügig erhöhte Pu-Anfangskonzentration) ergeben sich sogar mit $-2,5 \text{ pcm/ppm}$ etwas stärker negative Werte des BWC als bei WPU053. Mit steigender Er-Konzentration erhält man jedoch wie bei den anderen untersuchten

ten mit hohem Abbrand an Brennelemente mit geringerem Abbrand verloren gehen, bevor sie durch das im Kühlmittel enthaltene Bor eingefangen werden. Daher würden sich geringere Absolutwerte des BWC ergeben, als sie hier bestimmt werden. Für eine prinzipielle Diskussion der Zeitabhängigkeit kann dieser Effekt jedoch vernachlässigt werden. Bei der im weiteren diskutierten mittleren Bor-Wirksamkeit gehen aufgrund des Mittelungsprozesses bei BOC nur Werte von BWC ein, für die die Pu-Konzentrationen noch hinreichend groß sind, so dass eine Zell-Rechnung verlässliche Werte des BWC ergibt.

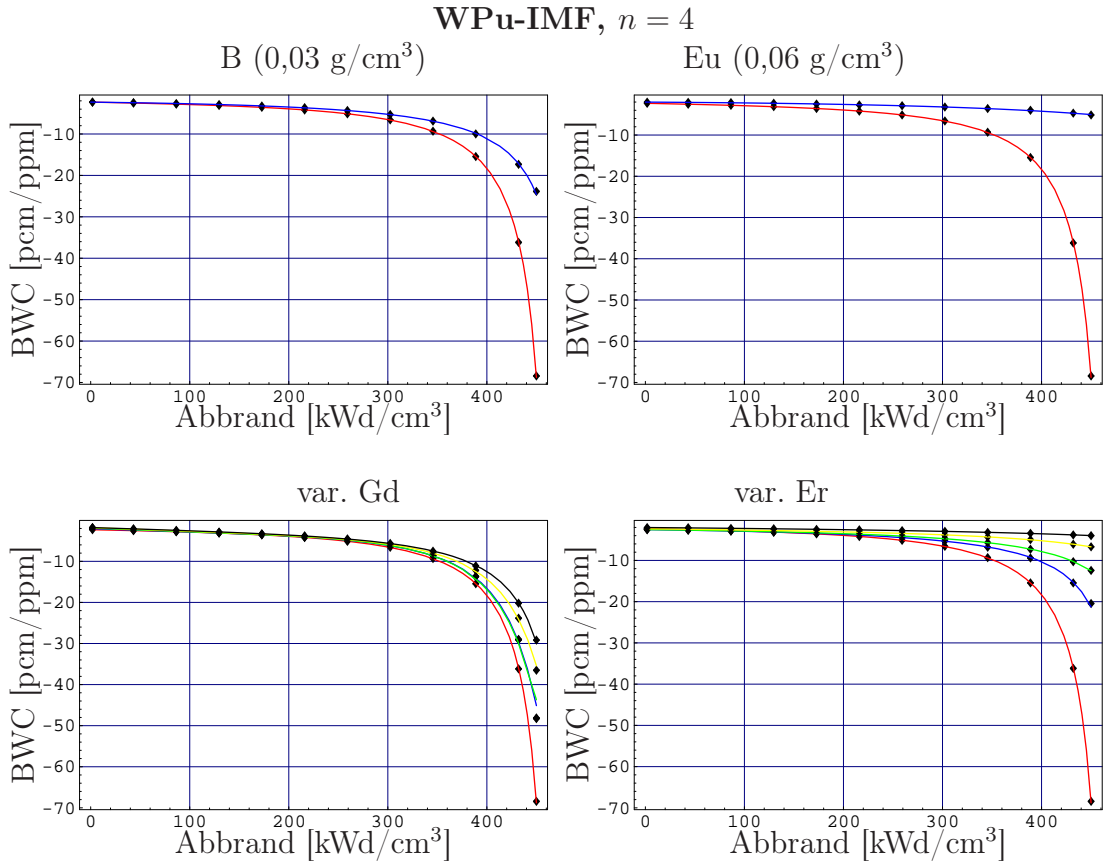


Abbildung 9.9: Abbrandabhängigkeit der Bor-Wirksamkeit BWC für die WPu-Referenzbrennstoffe mit Zielabbrand 450 kWd/cm³ ($n = 4$).

Alle Abbildungen enthalten die Kurve für WPu053 (rot) und zusätzlich: WPBo05730 (blau, oben, links), WPEu07760 (blau, oben rechts), verschiedene Konzentrationen von Gadolinium, WPGd05420, WPGd05440, WPGd05580 und WPGd055120 (unten links) sowie Erbium, WPER05825, WPER06240, WPER07155 und WPER08770 (unten rechts) nach Tabelle 9.9, wobei zunehmende Konzentrationen zu weniger negativen Werten des BWC führen.

BP etwas weniger negative Werte des BWC, bei der höchsten untersuchten Konzentration ist der Wert mit $-2,0$ pcm/ppm vergleichbar zu WPEu07740 oder WPGd05420. Auch für EOL ergibt sich die typische Abhängigkeit des BWC von der anfänglichen Pu-Konzentration, während bei WPER05825 noch ein Wert von -20 pcm/ppm erreicht wird, ergibt sich für WPER08770 mit $-4,0$ pcm/ppm der am wenigsten negative BWC der hier untersuchten BP-Konzentrationen.

9.5.3 Referenzbrennstoffe mit BP und mittlere Anfangsreaktivität

In Kapitel 8.3 wurde dargestellt, wie aus den bislang diskutierten Werten von $\rho_{av}(\text{BOC})$ und $\text{BWC}(t)$ die sich ergebende kritische Bor-Konzentration $c_B(\text{BOC})$ bestimmt werden

kann (siehe Gleichungen 8.1 und 8.2).

In den Tabellen 9.10 und 9.11 sind die Werte der mittleren Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$, der mittleren Bor-Wirksamkeit $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ und der sich daraus ergebenden kritischen Bor-Konzentration $c_B(\text{BOC})$ für alle untersuchten Referenzbrennstoffe zusammengefasst. Dabei wurden die entsprechenden Ergebnisse für Uran-, MOX- und reine IMF-Brennstoffe bereits in Kapitel 8.3 diskutiert.

Die Zugabe brennbarer Neutronengifte führt in allen Fällen sowohl zu einer Reduzierung der anfänglichen Überschussreaktivität wie einer Absenkung der mittleren Bor-Wirksamkeit. Wie in Abschnitt 9.2 erläutert, wurden die hier untersuchten B- und Eu-Konzentrationen so bestimmt, dass sich für die Referenzbrennstoffe mit hohem Zielabbrand von 450 kWd/cm^3 bei $n = 4$ akzeptable Werte des Bor-Bedarfs ergeben. Bei den vier zugehörigen Referenzbrennstoffen RPBo06820, RPEu09140, WPBo05730 und WPEu07760 ergeben sich für $\rho_{av}(\text{BOC})$ Werte von 0,080–0,100, für diese Brennstoffe ist damit $\rho_{av}(\text{BOC})$ um über einen Faktor zwei gegenüber dem jeweiligen Referenzbrennstoff ohne BP (RPu064 bzw. WPu053) reduziert. Während bei den Brennstoffen mit Bor $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ nur geringfügig weniger negativ ist als bei den Referenz-IMF ohne BP, ist bei den IMF mit Europium $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ um über 40% weniger negativ als bei den WPu-IMF. Für WPEu07760 ergibt sich damit ein Bor-Bedarf bei BOC von 2000 ppm, bei RPEu09140 liegt er mit 2100 ppm sogar noch leicht über dem hier als akzeptabel angenommenen Wert von 2000 ppm. Bei RPBo06820 und WPBo05730 ergeben sich dagegen mit 1600 bzw. 1800 ppm in beiden Fällen akzeptable Werte für $c_B(\text{BOC})$, die sogar kleiner oder gleich groß sind wie die für die entsprechenden MOX-Brennstoffe bestimmten Werte von $c_B(\text{BOC})$.

Bei den Referenzbrennstoffen für einen Zielabbrand von 300 kWd/cm^3 und $n = 3$ unterscheiden sich die Referenzbrennstoffe für Europium (RPEu07540 und WPEu06860) hinsichtlich $\rho_{av}(\text{BOC})$ und $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ nur schwach von den Brennstoffen mit Zielabbrand 450 kWd/cm^3 , beide Referenzbrennstoffe weisen jedoch einen Bor-Bedarf bei BOC von maximal 2000 ppm auf. Die untersuchte Bor-Konzentration führt dagegen bei RPBo04920 und WPBo04130 zu niedrigen Werten von $\rho_{av}(\text{BOC})$, so dass sich für $c_B(\text{BOC})$ sehr niedrige Werte unter 600 ppm ergeben. Allerdings führt beim Referenzbrennstoff WPBo04130 der starke Reaktivitätsanstieg nach BOL durch den Abbau des Bor dazu, dass das Maximum der mittleren Reaktivität nicht zu BOC vorliegt. Vielmehr steigt die mittlere Reaktivität bis ca. 50 kWd/cm^3 Zyklusabbrand an. Bei diesem Brennstoff wurden daher auch für den Zeitpunkt maximaler mittlerer Reaktivität Werte von ρ_{av} , BWC_{av} und ein sich daraus ergebender Wert von $c_B(\text{BOC})$ bestimmt (siehe auch die anschließende Diskussion der IMF mit Gd als BP). Auch zum Zeitpunkt maximaler mittlerer Reaktivität ist der Wert von $c_B(\text{Max.})$ mit 600 ppm jedoch sehr gering.

Bei den Brennstoffen mit Gadolinium als brennbarem Neutronengift führt der im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Einsatz in Form einer homogenen Mischung mit dem Brennstoff zu einem sehr schnellen Ausbrennen des Gd. Dies wiederum bedingt bei praktisch allen betrachteten WPGd-IMF (bis auf WPGd05420), dass während eines Zyklus die mittlere Reaktivität zu Beginn des Zyklus ansteigt und erst bei 10–40 kWd/cm^3 Zyklusabbrand ein Maximum annimmt (siehe hierzu Abbildung 9.10).

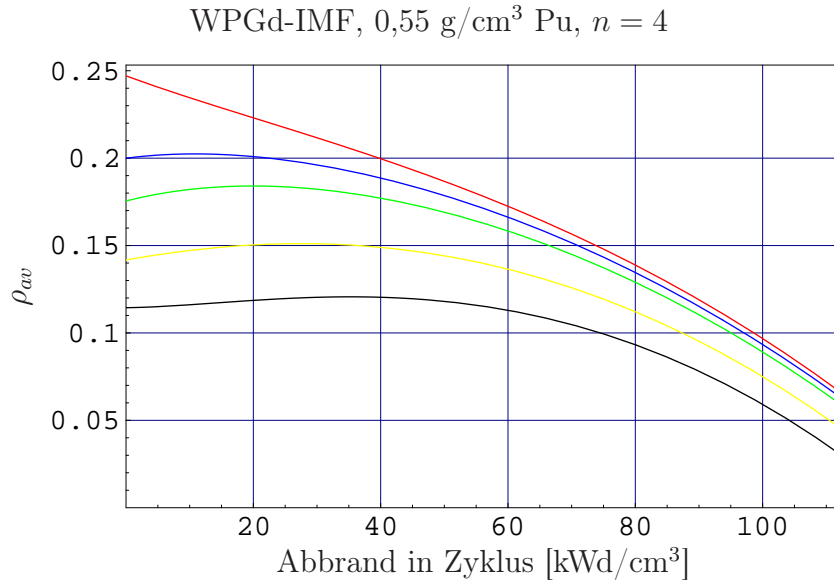


Abbildung 9.10: Mittlere Reaktivität ρ_{av} der WPGd-IMF mit einer Anfangskonzentration von 0,55 g/cm³ Pu während eines Zyklus von 112,5 kWd/cm³ Länge mit $n = 4$. Die Kurven entsprechen WPGd-IMF ohne BP (rot) bzw. steigenden BP-Konzentrationen (blau, grün, gelb, schwarz), für die zugehörigen BP-Konzentrationen siehe Tabelle 9.7.

Bei einem solchen Reaktivitätsverlauf ist damit nicht a priori zu erwarten, dass die zu Beginn eines Zyklus benötigte kritische Bor-Konzentration die höchste benötigte Konzentration darstellt. Für diese Brennstoffe ist daher neben $\rho_{av}(\text{BOC})$ zusätzlich der Maximalwert der mittleren Reaktivität $\rho_{av}(\text{Max.})$ angegeben. Auf der Basis der zum Zeitpunkt maximaler mittlerer Reaktivität vorliegenden mittleren Bor-Wirksamkeit $\text{BWC}_{av}(\text{Max.})$ ist in Tabellen 9.10 und 9.11 daher zusätzlich eine kritische Bor-Konzentration $c_B(\text{Max.})$ für diesen Zeitpunkt angegeben.

Bei den RPGd-IMF für $n = 3$ tritt der maximale Bor-Bedarf bei allen untersuchten Gd-Konzentrationen während des Zyklus, bei Erreichen von $\rho_{av}(\text{Max.})$ auf. Für $n = 3$ genügt bereits die niedrigste Gd-Konzentration von 0,03 g/cm³, um $c_B(\text{BOC})$ auf einen akzeptablen Wert von 1700 ppm zu senken. Beim Abbrand über vier Zyklen tritt für niedrige Gd-Konzentrationen der höchste Bor-Bedarf bei BOC auf, erst mit zunehmendem Gd-Gehalt führt die starke Abnahme von $\rho_{av}(\text{BOC})$ dazu, dass bei BOC geringere Werte des Bor-Bedarfs auftreten als während des Zyklus. Für hohe Gd-Konzentrationen wird das Maximum des Bor-Bedarfs bei ca. 30–40 kWd/cm³ Zyklusabbrand erreicht. Für $n = 4$ ist eine Gd-Konzentration von 0,06 g/cm³ ausreichend, um den Bor-Bedarf des Referenzbrennstoffs im Maximum auf 1600 ppm abzusenken.

Für die WPGd-IMF ergibt sich ein deutlich höherer Gd-Bedarf, um zu akzeptablen Werten des Bor-Bedarfs zu kommen. Bei den Referenzbrennstoffen mit einem Zielabbrand von 300 kWd/cm³ und $n = 3$ wird der maximale Bor-Bedarf je nach Gd-Konzentration zwischen BOC und ca. 50 kWd/cm³, also der halben Zykluslänge, erreicht. Erst eine Gd-Konzentration von 0,08 g/cm³ führt mit $c_B(\text{Max.})$ von 2000 ppm zu einer Brennstoff-

Kombination mit akzeptablem Bor-Bedarf. Bei den WPGd-IMF mit hohem Zielabbrand und $n = 4$ ist aufgrund der höheren Pu-Konzentration die Wirksamkeit des Gd deutlich geringer als bei den WPGd-IMF mit Zielabbrand 300 kWd/cm^3 . Daher wird trotz eines Anstiegs der mittleren Reaktivität zu BOC aufgrund des stärkeren Anstiegs der mittleren Bor-Wirksamkeit der maximale Bor-Bedarf für alle untersuchten Gd-Konzentrationen bereits bei BOC erreicht. Für die WPGd-IMF mit $n = 4$ ist mit $0,12 \text{ g/cm}^3$ eine doppelt so hohe Gd-Konzentration zum Erreichen einer akzeptablen Brennstoff-Kombination notwendig wie bei den RPGd-IMF.

Die unterschiedlichen untersuchten Er-Konzentrationen führen bei den RPER-IMF mit niedrigem Zielabbrand und $n = 3$ zu Werten von $\rho_{av}(\text{BOC})$ und $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$, die denjenigen der RPER-IMF mit hohem Zielabbrand $n = 4$ bei gleicher Er-Konzentration nahezu entsprechen. So wird $\rho_{av}(\text{BOC})$ bei der niedrigsten untersuchten Er-Konzentration auf $0,113$ bzw. $0,116$ reduziert, die höchste Er-Konzentration führt zu Werten von $0,042$ bzw. $0,050$. Entsprechend ändert sich die Bor-Wirksamkeit aufgrund des deutlich ansteigenden Pu-Bedarfs mit steigender Er-Konzentration von $-4,5$ bzw. $-3,9 \text{ pcm/ppm}$ bei der niedrigsten Er-Konzentration zu $-2,7$ bzw. $-2,8 \text{ pcm/ppm}$ bei $0,40 \text{ g/cm}^3$ Er. In der Bilanz ergeben sich für RPER04915 mit einem $c_B(\text{BOC})$ von 1800 ppm bzw. RPER07020 mit einem $c_B(\text{BOC})$ von 1900 ppm akzeptable Werte des Bor-Bedarfs. Bei allen Referenzbrennstoffen mit Er als BP ergibt sich der maximale Bor-Bedarf bei BOC.

Bei den WPER-IMF führt die niedrigste betrachtete Er-Konzentration bei $n = 3$ zu einem Bor-Bedarf von 2000 ppm bei BOC. Die höheren untersuchten Er-Konzentrationen ergeben eine stärker reduzierte mittlere Anfangsreaktivität von $0,037$ – $0,058$ und damit verbundene Werte von $c_B(\text{BOC})$ von deutlich unter 1000 ppm . Für die Referenzbrennstoffe mit $n = 4$ wird mit $0,40 \text{ g/cm}^3$ Er ein Bor-Bedarf von maximal 1600 ppm erreicht, auch hier führen die höheren Er-Konzentrationen zu Werten von $c_B(\text{BOC})$ unter 1000 ppm .

Damit lassen sich schließlich für alle untersuchten Kombinationen aus Zielabbrand (300 kWd/cm^3 bei $n = 3$ bzw. 450 kWd/cm^3 bei $n = 4$), verwendetem Plutonium (RPu und WPu) sowie den untersuchten brennbaren Neutronengiften Referenzbrennstoffe identifizieren, die einen maximalen Bor-Bedarf von weniger als 2000 ppm aufweisen.¹⁹ Die Eigenschaften dieser Brennstoffe sind in Tabelle 9.12 zusammengefasst.

¹⁹Bei der hier untersuchten Europium-Konzentration ist der Bor-Bedarf bei BOC für diesen Referenzbrennstoff immer noch geringfügig höher als die vorgegebenen 2000 ppm . Da lediglich eine Europium-Konzentration untersucht wurde, wird dieser Brennstoff trotzdem als Referenzbrennstoff angesehen.

Brennstoff	Zyklen/ Abbrand [kWd/cm ³]	U-235-/ Pu-Gehalt	$\rho_{av}(\text{BOC})/$ (Max.)	$\text{BWC}_{av}(\text{BOC})/$ (Max.) [pcm/ppm]	$c_B(\text{BOC})/$ (Max.) [ppm]
Uran					
Uran29	3/300	2,9%	0,122	−8,6	1100
Uran39	4/450	3,9%	0,118	−7,2	1200
RPu-MOX					
MOXR35	3/300	3,5%	0,085	−3,7	1500
MOXR49	4/450	4,9%	0,081	−3,0	1700
RPu-IMF					
RPu044	3/300	0,44 g/cm ³	0,206	−5,1	3500
RPu064	4/450	0,64 g/cm ³	0,181	−4,2	3600
RPu-IMF mit Bor					
RPBo04920	3/300	0,49 g/cm ³	0,054	−4,2	600
RPBo06820	4/450	0,68 g/cm ³	0,088	−3,7	1600
RPu-IMF mit Europium					
RPEu07540	3/300	0,75 g/cm ³	0,078	−2,6	1800
RPEu09140	4/450	0,91 g/cm ³	0,082	−2,5	2100
RPu-IMF mit Erbium					
RPEr04915	3/300	0,49 g/cm ³	0,113	−4,5	1800
RPEr05120	3/300	0,51 g/cm ³	0,087	−4,3	1300
RPEr05728	3/300	0,57 g/cm ³	0,059	−3,8	800
RPEr07940	3/300	0,79 g/cm ³	0,042	−2,7	400
RPEr06815	4/450	0,68 g/cm ³	0,116	−3,9	2200
RPEr07020	4/450	0,70 g/cm ³	0,099	−3,7	1900
RPEr07528	4/450	0,75 g/cm ³	0,075	−3,4	1300
RPEr08740	4/450	0,87 g/cm ³	0,050	−2,8	700
RPu-IMF mit Gadolinium					
RPGd04430	3/300	0,44 g/cm ³	0,096 (0,139)	−4,9 (−6,3)	1300 (1700)
RPGd04560	3/300	0,45 g/cm ³	0,052 (0,124)	−4,6 (−6,3)	500 (1500)
RPGd04590	3/300	0,45 g/cm ³	0,014 (0,099)	−4,5 (−6,5)	n.a. (1100)
RPGd045120	3/300	0,45 g/cm ³	<0,0 (0,075)	−4,5 (−6,8)	n.a. (700)
RPGd06430	4/450	0,64 g/cm ³	0,125 (0,130)	−4,0 (−4,5)	2400 (2200)
RPGd06460	4/450	0,64 g/cm ³	0,093 (0,107)	−4,0 (−4,7)	1600 (1600)
RPGd06590	4/450	0,65 g/cm ³	0,069 (0,091)	−3,8 (−4,8)	1000 (1300)
RPGd066120	4/450	0,66 g/cm ³	0,049 (0,074)	−3,7 (−4,7)	500 (900)

Tabelle 9.10: Zusammenfassung der mittleren Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$, mittleren Bor-Wirksamkeit $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ und der sich daraus ergebenden kritischen Bor-Konzentration $c_B(\text{BOC})$ für alle verschiedenen Referenzbrennstoffe mit RPu.

Brennstoff	Zyklen/ Abbrand [kWd/cm ³]	U-235-/ Pu-Gehalt	$\rho_{av}(\text{BOC})/$ (Max.)	$\text{BWC}_{av}(\text{BOC})/$ (Max.) [pcm/ppm]	$c_B(\text{BOC})/$ (Max.) [ppm]
Uran					
Uran29	3/300	2,9%	0,122	−8,6	1100
Uran39	4/450	3,9%	0,118	−7,2	1200
WPu-MOX					
MOXW29	3/300	2,9%	0,112	−4,7	1700
MOXW40	4/450	4,0%	0,102	−4,0	1800
WPu-IMF					
WPu037	3/300	0,37 g/cm ³	0,264	−5,1	4600
WPu053	4/450	0,53 g/cm ³	0,236	−4,6	4500
WPu-IMF mit Bor					
WPBo04130	3/300	0,41 g/cm ³	0,039 (0,063)	−4,2 (−5,6)	200 (600)
WPBo05730	4/450	0,57 g/cm ³	0,099	−3,9	1800
WPu-IMF mit Europium					
WPEu06860	3/300	0,68 g/cm ³	0,080	−2,5	2000
WPEu07760	4/450	0,77 g/cm ³	0,081	−2,6	2000
WPu-IMF mit Erbium					
WPEr04225	3/300	0,42 g/cm ³	0,121	−4,5	2000
WPEr04840	3/300	0,48 g/cm ³	0,058	−4,0	700
WPEr06155	3/300	0,61 g/cm ³	0,036	−3,1	200
WPEr08570	3/300	0,85 g/cm ³	0,043	−2,3	600
WPEr05825	4/450	0,58 g/cm ³	0,139	−4,0	2700
WPEr06240	4/450	0,62 g/cm ³	0,089	−3,7	1600
WPEr07155	4/450	0,71 g/cm ³	0,054	−3,1	800
WPEr08770	4/450	0,87 g/cm ³	0,049	−2,5	800
WPu-IMF mit Gadolinium					
WPGd03720	3/300	0,37 g/cm ³	0,183 (0,204)	−4,9 (−5,8)	3100 (3100)
WPGd03840	3/300	0,38 g/cm ³	0,145 (0,191)	−4,6 (−5,8)	2500 (2700)
WPGd03880	3/300	0,38 g/cm ³	0,093 (0,159)	−4,6 (−6,3)	1400 (2000)
WPGd038120	3/300	0,38 g/cm ³	0,058 (0,123)	−4,5 (−6,8)	600 (1400)
WPGd05420	4/450	0,54 g/cm ³	0,198	−4,3	3900
WPGd05440	4/450	0,54 g/cm ³	0,175 (0,180)	−4,2 (−4,7)	3500 (3200)
WPGd05580	4/450	0,55 g/cm ³	0,140 (0,153)	−4,0 (−4,8)	2800 (2600)
WPGd055120	4/450	0,55 g/cm ³	0,108 (0,125)	−4,0 (−4,9)	2000 (1900)

Tabelle 9.11: Zusammenfassung der mittleren Anfangsreaktivität $\rho_{av}(\text{BOC})$, mittleren Bor-Wirksamkeit $\text{BWC}_{av}(\text{BOC})$ und der sich daraus ergebenden kritischen Bor-Konzentration $c_B(\text{BOC})$ für alle verschiedenen Referenzbrennstoffe mit WPu.

Bezeichnung	Zyklen/ Zielabbbrand	Anreicherung/ Pu-Gehalt	BP- Konz.
Uran			
Uran29	3/300	2,9% U-235	
Uran39	4/450	3,9% U-235	
RPu-MOX			
MOXR35	3/300	3,5% Pu-fis	
MOXR49	4/450	4,9% Pu-fis	
RPu-IMF			
RPu044	3/300 kWd cm ³	0,44 g/cm ³ Pu-tot	
RPu064	4/450 kWd cm ³	0,64 g/cm ³ Pu-tot	
RBo04920	3/300 kWd cm ³	0,49 g/cm ³ Pu-tot	0,2 g/cm ³ B
RBo06820	4/450 kWd cm ³	0,68 g/cm ³ Pu-tot	0,2 g/cm ³ B
RPEu07540	3/300 kWd cm ³	0,75 g/cm ³ Pu-tot	0,4 g/cm ³ Eu
RPEu09140	4/450 kWd cm ³	0,91 g/cm ³ Pu-tot	0,4 g/cm ³ Eu
RPEr04915	3/300 kWd cm ³	0,49 g/cm ³ Pu-tot	0,15 g/cm ³ Er
RPEr07020	4/450 kWd cm ³	0,70 g/cm ³ Pu-tot	0,20 g/cm ³ Er
RPGd04430	3/300 kWd cm ³	0,44 g/cm ³ Pu-tot	0,03 g/cm ³ Gd
RPGd06460	4/450 kWd cm ³	0,64 g/cm ³ Pu-tot	0,06 g/cm ³ Gd
WPu-MOX			
MOXW29	3/300	2,9% Pu-fis	
MOXW40	4/450	4,0% Pu-fis	
WPu-IMF			
WPu037	3/300 kWd cm ³	0,37 g/cm ³ Pu-tot	
WPu053	4/450 kWd cm ³	0,53 g/cm ³ Pu-tot	
WBo04130	3/300 kWd cm ³	0,41 g/cm ³ Pu-tot	0,03 g/cm ³ B
WBo05730	4/450 kWd cm ³	0,57 g/cm ³ Pu-tot	0,03 g/cm ³ B
WPEu06860	3/300 kWd cm ³	0,68 g/cm ³ Pu-tot	0,06 g/cm ³ Eu
WPEu07760	4/450 kWd cm ³	0,77 g/cm ³ Pu-tot	0,06 g/cm ³ Eu
WPEr04225	3/300 kWd cm ³	0,42 g/cm ³ Pu-tot	0,25 g/cm ³ Er
WPEr06240	4/450 kWd cm ³	0,62 g/cm ³ Pu-tot	0,40 g/cm ³ Er
WPGd03880	3/300 kWd cm ³	0,38 g/cm ³ Pu-tot	0,08 g/cm ³ Gd
WPGd055120	4/450 kWd cm ³	0,55 g/cm ³ Pu-tot	0,12 g/cm ³ Gd

Tabelle 9.12: Definition von Referenzbrennstoffen mit BP bei einem mittleren Bor-Bedarf bei BOC von weniger als 2000 ppm. Für die Referenzbrennstoffe Uran bzw. MOX siehe Tabelle 7.2.

Kapitel 10

Diskussion der Referenzbrennstoffe anhand von Bewertungs-Indikatoren

In den folgenden Abschnitten sollen wesentliche Eigenschaften uranfreier Brennstoffe (IMF) mit denjenigen von herkömmlichen MOX-Brennstoffen verglichen werden (siehe auch Pistner et al. (2006)). Dazu wurden in Kapitel 3 bereits die im Rahmen dieser Arbeit zu untersuchenden Indikatoren eingeführt, die als Basis für eine Bewertung der verschiedenen Brennstoffoptionen dienen können. Eine letztendliche Bewertung der Optionen kann jedoch, wie in Kapitel 3 begründet wurde, im Rahmen dieser Arbeit nicht bzw. nur sehr eingeschränkt erfolgen.

10.1 Diskussion von Sicherheitseigenschaften der untersuchten Brennstoffe

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Analyse von Aspekten der Reaktorsicherheit auf die Bestimmung von abbrandabhängigen Reaktivitätskoeffizienten für die untersuchten Brennstoffe beschränkt (siehe Kapitel 3). Dabei wurde bereits in den Kapiteln 7 und 9 die abbrandabhängige Bor-Wirksamkeit sowohl für klassische Uran- wie für MOX- und IMF-Brennstoffe genauer untersucht. Neben den Auswirkungen auf den Bor-Bedarf wird durch diesen Koeffizienten im wesentlichen auch die Abhängigkeit der Steuerstab-Wirksamkeit bestimmt. Da eine quantitative Analyse hierzu jedoch sinnvoll nur anlagen-spezifisch durchgeführt werden könnte, soll hier auf eine ausführliche Diskussion dieses Zusammenhangs verzichtet werden. Dagegen werden im Folgenden die in Kapitel 4.4 eingeführten Reaktivitätskoeffizienten der Brennstoff-Temperatur (FTC) und der Moderatordichte (MVC) für die untersuchten Brennstoffe diskutiert. Es soll dabei auch insbesondere die durch die Verwendung von brennbaren Neutronengiften bedingte Änderung der Reaktivitätskoeffizienten quantifiziert werden.

Hinsichtlich der Reaktivitätskoeffizienten ist dabei ein eindeutig negativer Wert zu allen Abbrandzeitpunkten eine wesentliche Voraussetzung für einen sicheren Reaktorbe-

trieb, um bei einer Änderung eines Betriebsparameters eine positive Rückkopplung auf die Reaktivität sicher ausschließen zu können. So soll bspw. durch die Rückkopplung der Reaktivität aufgrund von Änderungen der Brennstoff-Temperatur sichergestellt sein, dass bei auftretenden Transienten eine erhöhte Leistungsfreisetzung nicht zum Schmelzen des Brennstoffs führt, bevor die durch die Reaktivitätskoeffizienten bedingte Rückkopplung zu einer Leistungsreduktion führt. Dabei ist jedoch einerseits die bis zum Eintreten des Schmelzens erforderliche Energie stark von der konkreten Brennstoffzusammensetzung abhängig, andererseits wird die zeitliche Änderung der Brennstofftemperatur durch die thermischen Eigenschaften des Brennstoffs und damit durch die tatsächlich gewählte Brennstoffmatrix bestimmt. Insgesamt sollten daher sowohl zu wenig negative wie zu stark negative Reaktivitätskoeffizienten vermieden werden.¹ Für eine genauere quantitative Diskussion der Auswirkungen der Reaktivitätskoeffizienten auf die Reaktorsteuerung müssten allerdings dynamische Rechnungen zum Anlagenverhalten durchgeführt werden. Dies geht insbesondere aufgrund der dabei notwendigen gekoppelten thermodynamischen und neutronenphysikalischen Rechnungen über den Rahmen dieser Arbeit hinaus und sollte ggf. für die im Rahmen dieser Arbeit als besonders attraktiv identifizierten Referenzbrennstoffe in einer eigenständigen Untersuchung durchgeführt werden.

Im Folgenden sollen daher die abbrandabhängigen Reaktivitätskoeffizienten für IMF mit den heute bereits eingesetzten Uran- bzw. MOX-Brennstoffen verglichen werden. Damit können wesentliche quantitative Unterschiede identifiziert und eindeutig nicht akzeptable Werte der Reaktivitätskoeffizienten bestimmt werden. Dies ermöglicht letztlich einen Beitrag zur Gestaltung uranfreier Brennstoffe, indem Aussagen zu günstigen Brennstoffzusammensetzungen bzw. notwendigen Brennstoffeigenschaften getroffen werden können.

10.1.1 Brennstoff-Temperaturkoeffizient (FTC)

Im Rahmen dieser Arbeit wurde für alle in den Tabellen 9.10 und 9.11 bestimmten Referenzbrennstoffe der Brennstoff-Temperaturkoeffizient (fuel temperature coefficient, FTC) für den Übergang von einer Brennstofftemperatur von 900 K auf 300 K bei Beibehaltung aller übrigen Betriebsparameter bestimmt. Abbildung 10.1 fasst exemplarisch den abbrandabhängigen Verlauf des FTC für die in Tabelle 9.12 definierten RPu-IMF Referenzbrennstoffe für einen Zielabbrand von 450 kWd/cm³ zusammen. Dabei wird in jeder Abbildung der FTC für den Referenzbrennstoff eines ausgewählten BP (B, Eu, Er, Gd) im Vergleich mit dem FTC für die drei Brennstoffe ohne BP mit gleichem Zielabbrand — Uran39, MOXR49 sowie RPu064 — dargestellt. Es werden dabei wesentliche Abhängigkeiten des FTC deutlich.

Zunächst ist ersichtlich, dass diejenigen Brennstoffe mit U-238 in der Matrix (Uran39 und MOXR49) zu allen Abbrandzeitpunkten einen deutlich stärker negativen FTC aufweisen als die untersuchten IMF, was auf den starken negativen Beitrag des U-238 zurückgeführt

¹Sehr stark negative Reaktivitätskoeffizienten können bspw. bei einer Abschaltung des Reaktors und dem damit verbundenen Übergang zu niedrigen Temperaturen zu einer starken Freisetzung von Reaktivität führen. Es muss dabei zu jedem Zeitpunkt sichergestellt sein, dass ausreichende Reaktivitätsmargen zur sicheren Abschaltung eines Reaktors vorhanden sind.

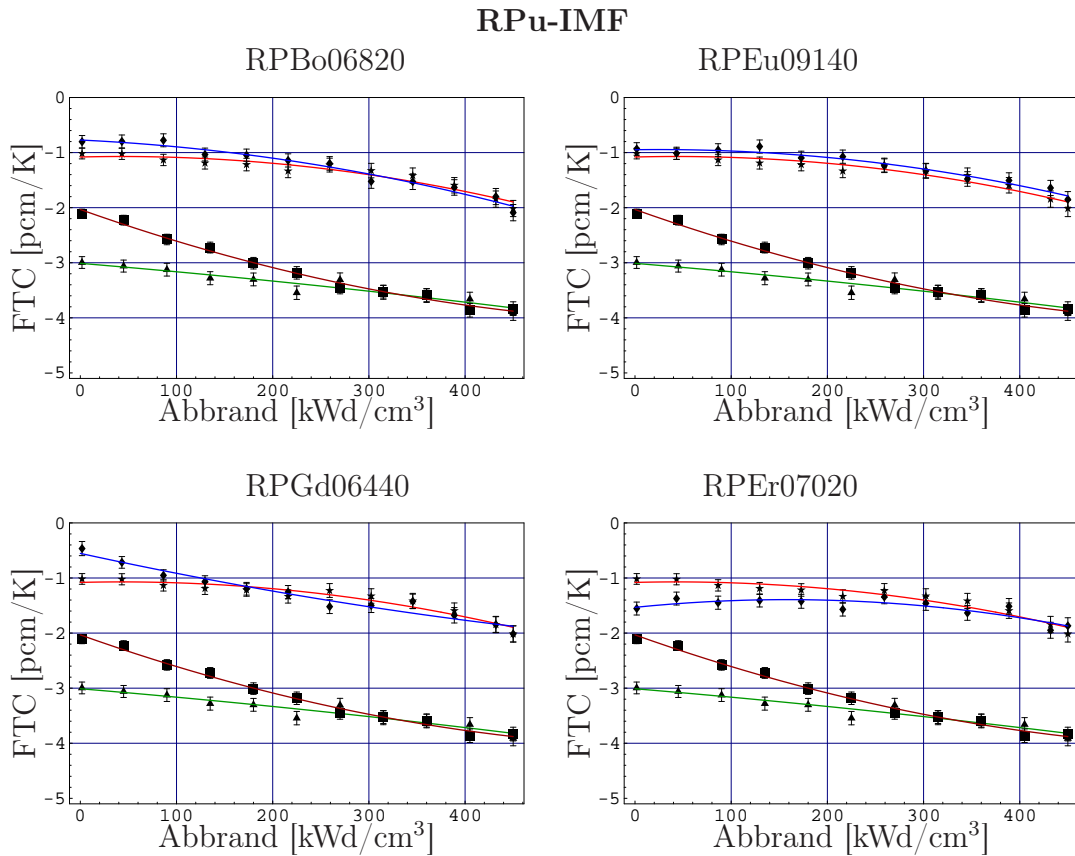


Abbildung 10.1: Abbrandabhängigkeit des Brennstoff-Temperaturkoeffizienten (FTC) beim Übergang von 900 K auf 300 K Brennstofftemperatur für die RPu-Referenzbrennstoffe mit einem Zielabbrand von 450 kWd/cm³. Die Abbildungen enthalten die Kurven für RP-Bo06820, RPEu09140, RPGd06640 und RPER07020 (blau). Darüber hinaus sind jeweils die Kurven für RPu064 (rot), MOXR49 (grün) und Uran39 (rotbraun) eingetragen.

werden kann. Der Beitrag des U-238 auf den FTC kann danach mit ca. -2 pcm/K abgeschätzt werden und hängt nur sehr schwach vom Abbrand ab. So bestimmt das U-238 aufgrund des starken Resonanzeinfangs im Referenzbrennstoff Uran39 bei BOL fast vollständig den Wert des FTC ($-2,1$ pcm/K). Die Abbrandabhängigkeit des FTC bei Uran39 ist auf den Aufbau der verschiedenen Pu-Isotope und die stärkere Thermalisierung des Neutronenspektrums zurückzuführen.

Dies wird besonders aus dem Vergleich mit dem abbrandabhängigen Verlauf des FTC bei MOXR49 deutlich. Aufgrund des stark negativen Beitrags der Pu-Isotope 240 und 242 ist der Wert des FTC von MOXR49 bei BOL mit $-3,0$ pcm/K um $0,9$ pcm/K stärker negativ als bei Uran39. Im Verlauf des Abbrands werden jedoch in Uran39 die verschiedenen Pu-Isotope aufgebaut, bis EOL ist die Isotopenzusammensetzung des in Uran39 und MOXR49 vorliegenden Pu fast vergleichbar (siehe hierzu Abschnitt 10.2.2). Dabei lässt der um ca. einen Faktor vier deutlich höhere Pu-Gehalt bei EOL in MOXR49 im Vergleich zu Uran39 (siehe Abschnitt 10.2.1) fast keine Auswirkungen auf den FTC erkennen.

Der Einfluss des Pu auf den FTC kann wiederum sehr gut am Beispiel des Referenzbrennstoffs RPu064 verdeutlicht werden. Aufgrund des Fehlens des U-238 in der Matrix ist FTC(BOL) bei RPu064 mit $-1,1$ pcm/K um ca. $-1,0$ pcm/K weniger negativ als bei Uran39. Der FTC wird vorrangig durch das enthaltene Pu bestimmt. Der Wert von $-1,1$ pcm/K für FTC(BOL) bei RPu064 entspricht dabei auch etwa dem Unterschied, der durch den Beitrag des Pu beim Übergang vom Uran39 Referenzbrennstoff zum MOXR49 Referenzbrennstoff festgestellt werden kann. Die abbrandabhängige Änderung des FTC ist bei RPu064 etwa vergleichbar zu MOXR49, der Wert des FTC nimmt von BOL bis EOL um ca. 1 pcm/K ab, wobei jedoch bei RPu064 die Abnahme des FTC in der zweiten Hälfte des Abbrands etwas höher ist als in der Ersten.²

Für die vier RPu-IMF Referenzbrennstoffe mit BP lässt sich festhalten, dass es lediglich in den ersten 100–200 kWd/cm³ Abbrand zu signifikanten Abweichungen der Werte des FTC zu denjenigen des RPu-IMF Referenzbrennstoffs ohne BP, RPu064, kommt. Dabei führen die drei thermischen Absorber Bor, Europium und Gadolinium zu weniger negativen Werten des FTC, lediglich Erbium als starker Resonanzabsorber liefert einen deutlich negativen Beitrag zum FTC, so dass für diesen Referenzbrennstoff bei BOL stärker negative Werte des FTC als bei RPu064 resultieren. Da sich die Werte der Referenzbrennstoffe mit BP denjenigen des FTC im Laufe des Abbrands annähern, sind die Werte des FTC bei BOL von besonderer Bedeutung für eine Beurteilung der Auswirkungen der BP auf den FTC. In Tabelle 10.1 sind daher für die im letzten Kapitel identifizierten Referenzbrennstoff die Werte von FTC(BOL) zusammengefasst.³

Zunächst lässt sich festhalten, dass sich der FTC(BOL) bei den Referenzbrennstoffen für einen niedrigen Zielabbrand von 300 kWd/cm³ nur geringfügig vom FTC(BOL) des entsprechenden Brennstoffs mit hohem Zielabbrand (450 kWd/cm³) unterscheidet, die Differenzen liegen in der Größenordnung des statistischen Fehlers der hier durchgeführten Berechnungen des FTC. Lediglich bei den Brennstoff-Typen mit thermischen Neutronenabsorbern (B, Eu, Gd) als BP sind die Werte des FTC für Brennstoffe mit geringem Zielabbrand i. d. R. etwas weniger negativ als bei den Brennstoffen mit hohem Zielabbrand.

Generell sind diese Abweichungen jedoch deutlich geringer als die Differenzen zwischen den verschiedenen Brennstoff-Typen. Die IMF mit BP für einen Zielabbrand von 450 kWd/cm³ zeigen Abweichungen des FTC(BOL) von den Werten des Referenz-IMF ohne BP von 50–100%. Bei den RPu-IMF tritt die größte Abweichung für RPGd06460 auf, hier beträgt FTC(BOL) mit einem Wert von $-0,56$ pcm/K nur noch ca. 50% des FTC(BOL) von RPu064. Bei RPBo06820 ist FTC(BOL) ca. 30% weniger negativ als bei RPu064. Für den Brennstoff mit Europium als BP, RPEu09140, ergibt sich ein geringfügig stärker negativer FTC(BOL) als bei RPu, allerdings ist aus Abbildung 10.1 erkennbar, dass bereits nach wenigen Tagen Bestrahlung mit Erreichen des Xe-Gleichgewichts der FTC geringfügig

²Demgegenüber zeigt MOXR49 einen etwa linearen Verlauf des FTC über den gesamten Abbrand.

³Dabei wurden die in dieser Tabelle zusammengefassten Werte des FTC für die unbestrahlten Brennstoffe berechnet. Demgegenüber zeigt Abbildung 10.1 den Verlauf für die bestrahlten Brennstoffe, die ersten eingetragenen Werte wurden bei fünf Tagen Abbrand, d. h. nach Erreichen des Xe-Gleichgewichts bestimmt.

300 kWd/cm ³ ($n = 3$)		450 kWd/cm ³ ($n = 4$)	
Brennstoff	FTC(BOL) [pcm/K]	Brennstoff	FTC(BOL) [pcm/K]
Uran			
Uran29	$-2,18 \pm 0,06$	Uran39	$-2,13 \pm 0,05$
MOX			
MOXR35	$-3,19 \pm 0,08$	MOXR49	$-3,04 \pm 0,08$
MOXW29	$-2,85 \pm 0,06$	MOXW40	$-2,83 \pm 0,07$
RPu-IMF			
RPu044	$-1,02 \pm 0,07$	RPu064	$-1,08 \pm 0,07$
RPBo04920	$-0,57 \pm 0,09$	RPBo06820	$-0,68 \pm 0,08$
RPEu07540	$-0,99 \pm 0,08$	RPEu09140	$-1,14 \pm 0,08$
RPEr04915	$-1,59 \pm 0,08$	RPEr07020	$-1,56 \pm 0,08$
RPGd04430	$-0,40 \pm 0,09$	RPGd06460	$-0,56 \pm 0,09$
WPu-IMF			
WPu037	$-0,87 \pm 0,05$	WPu053	$-0,90 \pm 0,05$
WPBo04130	$-0,03 \pm 0,09$	WPBo05730	$-0,24 \pm 0,08$
WPEu06860	$-0,90 \pm 0,08$	WPEu07760	$-0,93 \pm 0,07$
WPER04225	$-1,48 \pm 0,08$	WPER06240	$-1,68 \pm 0,08$
WPGd03880	$-0,03 \pm 0,10$	WPGd055120	$-0,01 \pm 0,09$

Tabelle 10.1: Zusammenfassung der Werte des Brennstoff-Temperaturkoeffizienten FTC(BOL) der unbestrahlten Referenz-Brennstoffe bei einem Übergang von 900 K auf 300 K Brennstofftemperatur. Als Fehler ist die statistische Genauigkeit der MCNP-Rechnungen (ein σ) angegeben.

weniger negativ wird als bei RPu064. Mit $-1,56$ pcm/K ergibt sich demgegenüber ein um ca. 45% stärker negativer Wert des FTC(BOL) bei der Verwendung von Erbium als BP. RPEr07020 weist damit einen nur noch ca. 30% weniger negativen Wert des FTC(BOL) auf als der Uran-Referenzbrennstoff Uran39, weicht jedoch noch um einen Faktor zwei vom Wert des MOXR49 Brennstoffs ab.

Noch deutlicher fallen die Unterschiede bei den WPu-IMF Referenzbrennstoffen aus. Der WPu-IMF ohne BP hat mit einem FTC(BOL) von $-0,9$ pcm/K bereits einen gegenüber RPu064 nochmals um ca. 20% reduzierten Wert des FTC. Auch für die WPu-IMF ergibt sich bei Verwendung von Gd als BP die stärkste Änderung des FTC(BOL). Aufgrund der zur Kompensation der hohen Anfangsreaktivität des WPu-IMF notwendigen Gd-Konzentration von $0,12$ g/cm³ ergibt sich für WPGd055120 ein Wert von FTC(BOL) von nur noch $-0,01$ pcm/K, aufgrund der statistischen Unsicherheiten kann hier also sogar ein leicht positiver Wert des FTC nicht ausgeschlossen werden. Auch die hier untersuchte Bor-Konzentration führt bei WPBo05730 zu einem nur noch sehr schwach negativen Wert des FTC(BOL), der sich auf nur noch ca. 25% des Wertes von WPu053 beläuft. Die Verwendung von Europium würde, wie im Falle der RPu-IMF zu einem leicht stärker

negativen Wert des $\text{FTC}(\text{BOL})$ führen als bei WPu053. Auch hier führt jedoch der Einsatz von Erbium zu einem deutlich günstigeren Wert des $\text{FTC}(\text{BOL})$. Aufgrund der hohen verwendeten Erbium-Konzentration ergibt sich mit $-1,68 \text{ pcm/K}$ für WPER06240 der am stärksten negative Wert des $\text{FTC}(\text{BOL})$ für alle in Tabelle 10.1 zusammengefassten IMF.

Schließlich soll noch untersucht werden, wie die Werte des $\text{FTC}(\text{BOL})$ von der jeweiligen Konzentration des verwendeten BP abhängen. Daher wurde für die vier Kombinationen von RPu bzw. WPu und Er bzw. Gd bei vorgegebener Pu-Konzentration der Wert von $\text{FTC}(\text{BOL})$ bei unterschiedlichen Konzentrationen der BP bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 10.2 zusammengefasst. Dabei ist für die Brennstoffe auf RPu-Basis jeweils eine Konzentration von $0,65 \text{ g/cm}^3$ RPu zugrundegelegt. Für die WPu-Brennstoffe ist die Abhängigkeit von der Gd-Konzentration bei einem Brennstoff mit $0,55 \text{ g/cm}^3$, die Abhängigkeit von der Er-Konzentration bei einer WPu-Konzentration von $0,60 \text{ g/cm}^3$ bestimmt worden.

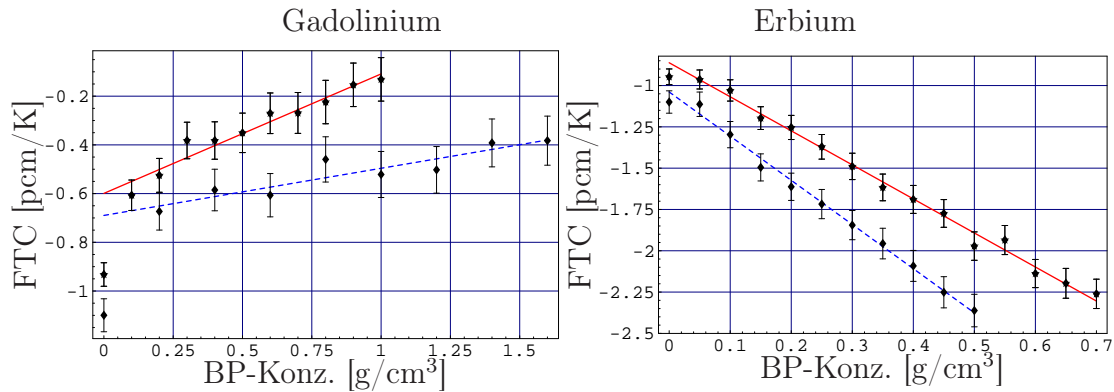


Abbildung 10.2: Abhängigkeit des Brennstoff-Temperaturkoeffizienten $\text{FTC}(\text{BOL})$ von der Konzentration der BP Erbium und Gadolinium. Die Abbildung links gibt den Einfluss des Gd für IMF mit $0,55 \text{ g/cm}^3$ WPu (—) und $0,65 \text{ g/cm}^3$ RPu (---) wieder, in der Abbildung rechts sind IMF mit $0,60 \text{ g/cm}^3$ WPu (—) und $0,65 \text{ g/cm}^3$ RPu (---) dargestellt.

Bei Erbium zeigt sich dabei für den untersuchten Bereich eine in guter Näherung lineare Abhängigkeit des $\text{FTC}(\text{BOL})$ von der Er-Konzentration. Für RPu-IMF ergibt sich im untersuchten Konzentrationsbereich eine Abnahme des $\text{FTC}(\text{BOL})$ um ca. $-2,6 \text{ (pcm}\cdot\text{K}^{-1})/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$, bei den WPu-IMF ergibt sich eine etwas geringere Wirksamkeit des Erbium von ca. $-2,0 \text{ (pcm}\cdot\text{K}^{-1})/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$.

Bei der Untersuchung der Referenzbrennstoffe wurde zusammen mit der Konzentration der BP immer auch die Konzentration des anfänglichen Pu variiert, um einen konstanten Zielabbrand zu erreichen. Damit sind quantitative Aussagen zur konzentrationsabhängigen Wirkung der BP auf den FTC bei BOL nicht sinnvoll, ohne das zugleich die Pu-Konzentration angepasst wird. Deshalb ist in Tabelle 10.2 der $\text{FTC}(\text{BOL})$ für die IMF mit einem Zielabbrand von 450 kWd/cm^3 zusammengefasst. Dabei sind lediglich die IMF mit unterschiedlichen Erbium bzw. Gadolinium-Konzentrationen dargestellt, um eine Abschätzung der Abhängigkeit von der BP-Konzentration zu vermitteln.

Es ist festzustellen, dass der $\text{FTC}(\text{BOL})$ sowohl bei den RPu-IMF wie bei den WPu-

Brennstoff	FTC(BOL) [pcm/K]	Brennstoff	FTC(BOL) [pcm/K]
RPu-IMF		WPu-IMF	
RPu064	$-1,08 \pm 0,07$	WPu053	$-0,90 \pm 0,05$
IMF mit Erbium			
RPEr06815	$-1,44 \pm 0,08$	WPEr05825	$-1,43 \pm 0,08$
RPEr07020	$-1,56 \pm 0,08$	WPEr06240	$-1,68 \pm 0,08$
RPEr07528	$-1,61 \pm 0,09$	WPEr07155	$-1,72 \pm 0,08$
RPEr08740	$-1,84 \pm 0,09$	WPEr08770	$-1,84 \pm 0,09$
IMF mit Gadolinium			
RPGd06430	$-0,57 \pm 0,08$	WPGd05420	$-0,50 \pm 0,07$
RPGd06460	$-0,56 \pm 0,09$	WPGd05440	$-0,28 \pm 0,08$
RPGd06590	$-0,44 \pm 0,09$	WPGd05580	$-0,21 \pm 0,09$
RPGd066120	$-0,38 \pm 0,09$	WPGd055120	$-0,01 \pm 0,09$

Tabelle 10.2: Zusammenfassung der Werte des Brennstoff-Temperaturkoeffizienten FTC(BOL) der unbestrahlten Referenz-Brennstoffe mit unterschiedlichen Konzentrationen von Erbium und Gadolinium bei einem Übergang von 900 K auf 300 K Brennstofftemperatur. Als Fehler ist die statistische Genauigkeit der MCNP-Rechnungen (ein σ) angegeben.

IMF mit zunehmender Er-Konzentration deutlich stärker negativ wird. Bei den beiden Referenzbrennstoffen mit der höchsten Er-Konzentration, RPEr08740 und WPEr08770 ergibt sich mit einem Wert von $-1,84$ pcm/K für beide Brennstoffe ein FTC, der trotz der gegenüber den reinen IMF-Referenzbrennstoffen deutlich erhöhten Pu-Konzentration um ca. 80–100% stärker negativ ist als bei RPu064 bzw. WPu053.

Demgegenüber wird bei Zugabe von Gadolinium zum Brennstoff der Wert des FTC(BOL) mit zunehmender Gd-Konzentration immer weniger negativ. Bei den WPu-IMF ist für den Brennstoff mit der höchsten Gd-Konzentration von $0,12$ g/cm³ im Rahmen des statistischen Fehlers der hier durchgeführten Berechnungen sogar ein positiver Wert für FTC(BOL) nicht auszuschließen, der Referenzbrennstoff mit RPu weist dagegen bei dieser Gd-Konzentration noch einen FTC(BOL) von $-0,38$ pcm/K auf. Auch dieser Wert beträgt jedoch nur noch 40% des RPu064-Wertes.

Fazit

Die IMF weisen — unabhängig von der verwendeten Pu-Isotopenzusammensetzung — einen gegenüber Uran- oder MOX-Brennstoffen deutlich weniger negativen FTC auf, die Änderung des FTC im Laufe des Abbrands ist dabei etwa vergleichbar mit derjenigen von MOX-Brennstoffen. Bei der Verwendung von brennbaren Neutronengiften wird der FTC zu Beginn des Abbrands in Abhängigkeit sowohl vom verwendeten Element wie von der eingesetzten Konzentration des BP beeinflusst. Dabei würde insbesondere die Verwendung von Gadolinium, aber auch von Bor oder Europium aufgrund ihrer hohen

thermischen Wirkungsquerschnitte zu einem signifikant weniger negativen FTC bei Beginn des Abbrands führen. Die Verwendung von Erbium führt demgegenüber aufgrund der starken Resonanzeigenschaften zu deutlich negativeren Werten des FTC. Für einen konkreten IMF-Brennstoff-Typ, welcher ebenfalls Erbium als BP verwendet, konnte am Beispiel russischer Leichtwasserreaktoren gezeigt werden (Bondarenko et al., 2003), dass sich bei geeigneten thermischen Eigenschaften des Brennstoffs mit Werten des FTC, welche den im Rahmen dieser Arbeit abgeschätzten Werten entsprechen, akzeptable Rückkopplungseigenschaften beim Einsatz solcher IMF ergeben würden. Hinsichtlich der sich ergebenden Werte des FTC ist damit die Verwendung von Erbium derjenigen von Gadolinium deutlich vorzuziehen.

10.1.2 Moderatordichte-Koeffizient (MVC)

Als zweiter wesentlicher Reaktivitätskoeffizient wurde der Moderatordichte-Koeffizient (MVC) für alle in den Tabellen 9.10 und 9.11 bestimmten Referenzbrennstoffe untersucht. Hierzu sind im Rahmen dieser Arbeit Rechnungen für einen Übergang der Moderatordichte von 100% auf 90% (10% Void) und von 100% auf 10% (90% Void) durchgeführt worden. Da die Werte des MVC bei einer Änderung der Moderatordichte auch wesentlich von der im Moderator vorliegenden Bor-Konzentration abhängen, wurden weiterhin Rechnungen für eine Brennstoffzelle ohne Bor im Moderator und eine mit 2000 ppm Bor im Moderator durchgeführt. In Abbildung 10.3 ist der prinzipielle Verlauf des MVC am Beispiel der Referenzbrennstoffe Uran39, MOXR49 und RPu064 dargestellt. Diese Beispiele erlauben eine Diskussion der wichtigsten Zusammenhänge in Bezug auf die Abbrandabhängigkeit des MVC.

Für Uran39 ergeben sich bei einer schwachen Änderung der Moderatordichte (10% Void) abbrandabhängige Werte des MVC zwischen -100 pcm/% bei BOL und -250 pcm/% bei EOL. Bei einem Borgehalt von 2000 ppm im Moderator erhöhen sich die Werte des MVC um ca. $+150$ pcm/%, woraus sich für die Werte zwischen BOL und ca. 100 kWd/cm³ bereits positive Werte des MVC ergeben.⁴ Bei einer starken Änderung der Moderatordichte (90% Void) wird der MVC im Laufe des Abbrands deutlich stärker negativ, es ergeben sich Werte zwischen ca. -500 pcm/% bei BOL und -1000 pcm/% bei EOL. Auch beim Übergang zu 90% Void führt eine Bor-Konzentration von 2000 ppm zu Werten des MVC, die etwa um $+150$ pcm/% stärker positiv ausfallen.

Die abbrandabhängige Abnahme des MVC ist für MOXR49 ebenso feststellbar wie bei Uran39. Allerdings ist der MVC für 10% Void bei BOL mit -150 pcm/% im Falle von MOXR49 bereits etwas stärker negativ als bei Uran39, fällt jedoch ebenfalls nur auf einen Wert von -250 pcm/% bei EOL. Auch die Auswirkung des Bor im Moderator sind bei MOXR49 wesentlich geringer als bei Uran39 und führen nur zu Unterschieden im MVC von ca. $+50$ pcm/% bei BOL bis zu $+100$ pcm/% bei EOL, was auf das deutlich härtere Neutronenspektrum bei MOX-Brennstoffen und die damit verbundene geringere Bor-

⁴Wie aus Tabelle 9.11 ersichtlich wäre für einen solchen Brennstoff allerdings auch bei BOC lediglich eine kritische Bor-Konzentration von ca. 1200 ppm erforderlich, mit entsprechend geringeren Auswirkungen auf den MVC.

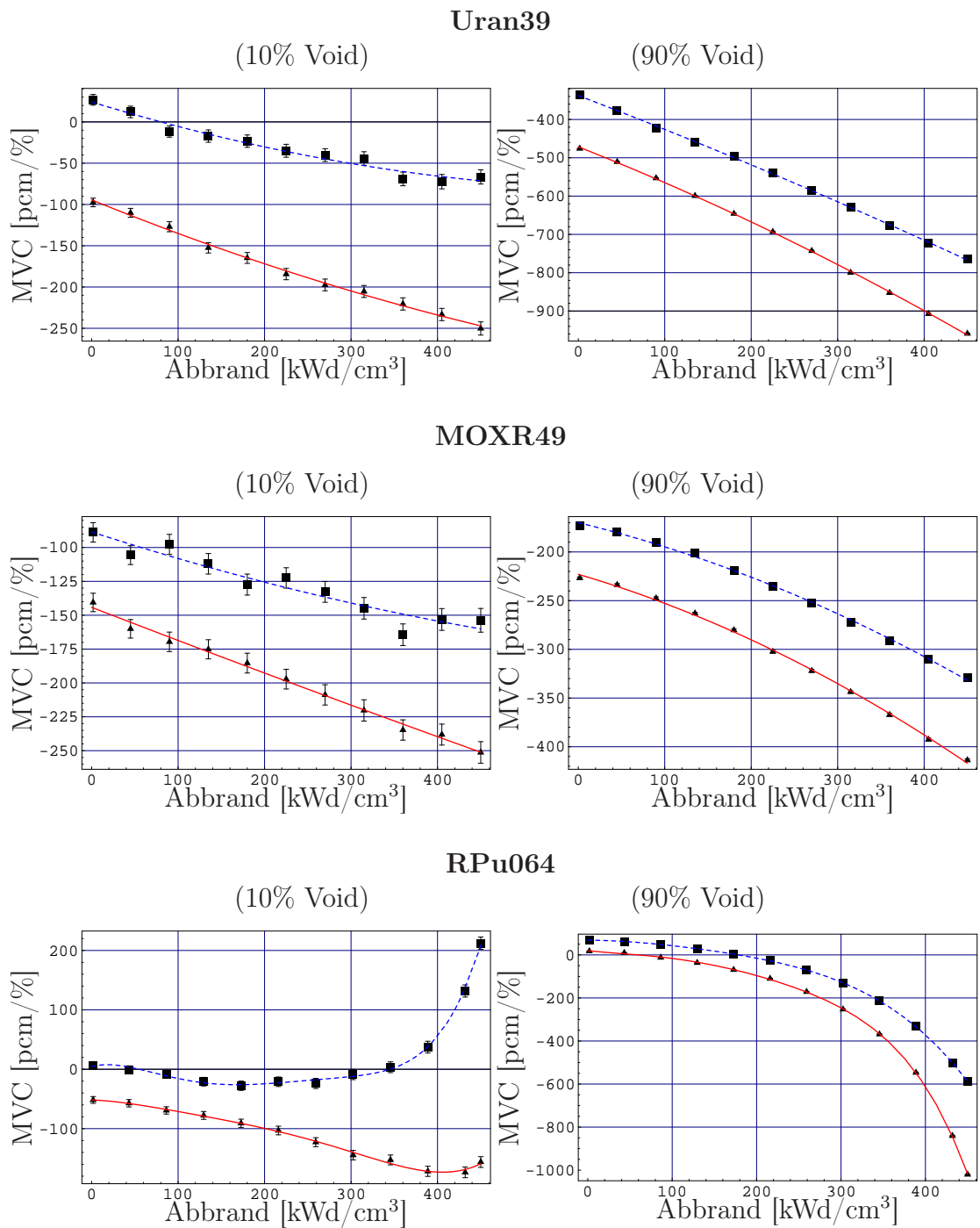


Abbildung 10.3: Abbrandabhängigkeit des Moderatorordichte-Koeffizienten (MVC) für eine Änderung der Moderatorordichte um 10% bzw. 90% am Beispiel der RPu-Referenzbrennstoffe MOXR49 und RPu064. Die beiden gezeigten Kurven entsprechen einem Moderator ohne Bor (—) und mit einer Konzentration von 2000 ppm Bor (- -).

Wirksamkeit zurückzuführen ist. Im Fall von 90% Void ergeben sich für MOXR49 deutlich

weniger negative Werte des MVC. Mit ca. -230 pcm/% bei BOL und -420 pcm/% bei EOL unterscheiden sich die Werte zwischen MOXR49 und Uran39 etwa um einen Faktor zwei. Dies kann auf die deutlich höheren Wirkungsquerschnitte der Plutoniumisotope für hochenergetische Neutronen zurückgeführt werden, die beim Übergang zu niedrigen Moderatorichten eine größere Rolle spielen. Auch bei 90% Void führt die hier betrachtete Bor-Konzentration von 2000 ppm im Moderator nur zu um $+50$ bis $+80$ pcm/% erhöhten Werten des MVC, was allerdings einer vergleichbaren prozentualen Änderung des MVC wie bei Uran39 entspricht.

Ein deutlich differenzierteres Bild der Abbrandabhängigkeit des MVC ergibt sich am Beispiel von RPu064. Für den Übergang zu 10% Void ergeben sich im Fall ohne Bor im Moderator Werte zwischen ca. -50 pcm/% und -180 pcm/%. Bereits hier ist der Wert des MVC(BOL) also nur noch sehr schwach negativ, was insbesondere auf den fehlenden Neutroneneinfang im U-238 zurückgeführt werden kann. Auch lässt sich hier bereits erkennen, dass sich am Ende des Abbrands wieder etwas weniger negative Werte des MVC ergeben, ein Minimum wird bei etwa 400 kWd/cm³ erreicht. Besonders ausgeprägt stellt sich dies für die Situation mit 2000 ppm Bor im Moderator dar. Hier ergeben sich für BOL zunächst leicht positive Werte des MVC. Bis etwa zur Mitte des Abbrands wird der MVC zunehmend stärker negativ, wobei sich keine Werte unter ca. -40 pcm/% ergeben. In der zweiten Hälfte des Abbrands nimmt der Wert des MVC dann wiederum zu und steigt bis EOL zu sehr hohen positiven Werten von über $+200$ pcm/%.

Dies ist darauf zurückzuführen, dass sich mit der extremen Abnahme der Plutoniumkonzentration im Brennstoff zum Ende des Abbrands der Neutroneneinfang im Moderator und hier insbesondere auch im enthaltenen Bor extrem bemerkbar macht. Da aufgrund der geringen Plutoniumkonzentration praktisch alle Neutronen thermalisiert werden können, führt bei EOL daher eine Reduzierung der Moderatorichte praktisch nicht zu einer Veränderung des Neutronenspektrums, allerdings folgt daraus ein entsprechend geringerer parasitärer Einfang im Moderator, was zu den ausgeprägten positiven Werten des MVC führt. Dieser Effekt ist allerdings wesentlich auf die bei der Berechnung des MVC vorgenommene Modellierung zurückzuführen und in dieser Form in einem realen System nicht zu erwarten. Aufgrund der sehr geringen Plutoniumkonzentration und der damit verbundenen geringen Absorption im hoch abgebrannten Brennstoff würden in einem aus Brennelementen mit verschiedenem Abbrand zusammengesetzten realen System die Neutronen aus den Bereichen mit hohem Abbrand in solche mit geringerem Abbrand diffundieren und dort absorbiert werden. Entsprechend wäre die Rolle des Bor als Absorber in einem gemischten Brennstoff-Gitter durch die Bereiche mit geringerem Abbrand deutlich reduziert (für eine Diskussion dieses Effekts siehe auch Kapitel 5.2).

Auch beim Übergang zu 90% Void ist die Abbrandabhängigkeit des RPu064, verbunden mit der extremen Abnahme der Plutoniumkonzentration im Brennstoff, wesentlich stärker als in Uran39 und MOXR49. Während sich bei BOL positive Werte des MVC ergeben, werden bis EOL mit ca. -1000 pcm/% Werte des MVC vergleichbar zu denjenigen in Uran39 bei EOL erreicht. Auch hier liefert eine Konzentration von 2000 ppm Bor im Moderator einen stark positiven Beitrag zum MVC. Dieser wird mit steigendem Abbrand aufgrund der zunehmenden Bedeutung der Absorption im Bor größer und führt bei EOL

zu einem um ca. +400 pcm/% stärker positiven MVC. Auch beim Übergang zu 90% Void ist allerdings zu berücksichtigen, dass sich insbesondere gegen EOL eine durch die Modellierung bedingte Unsicherheit hinsichtlich des tatsächlichen MVC ergibt. Bei der zugrundeliegenden geringen Moderatordichte kommt es zu einer sehr starken Kopplung zwischen den verschiedenen abgebrannten Brennelementen im Reaktorkern, wobei die Bedeutung des hoch abgebrannten Brennstoffs aufgrund der wesentlich geringeren Neutronenabsorption entsprechend geringer ausfallen würde als diejenige von frischem Brennstoff. Insbesondere nimmt auch, wie in Kapitel 4.4.4 diskutiert, bei sehr geringen Moderatordichten der Anteil des Neutronenleckage stark zu, welche bei den hier durchgeführten Rechnungen für ein unendlich ausgedehntes System nicht berücksichtigt wird. Speziell für hoch abgebrannte IMF sind also die hier bestimmten Werte des MVC nur als eine grobe Orientierung für das reale Verhalten des Systems anzusehen.

Im weiteren soll daher insbesondere untersucht werden, welche Werte sich für die verschiedenen Referenzbrennstoffe bei BOL ergeben. Typischerweise stellen diese Werte die am stärksten positiven Werte im Laufe des Abbrands dar. Da die Brennstoffe bei BOL mit den enthaltenen hohen Plutoniumkonzentrationen außerdem die Gesamtabsorption im Reaktor dominieren, können diese Werte als besonders relevant für eine Einschätzung des mittleren MVC bei der Verwendung von IMF angesehen werden. Sofern bei BOL ausreichend negative Werte des MVC eingehalten werden, kann auch auf ein akzeptables Gesamtverhalten des Brennstoffs geschlossen werden. In Tabelle 10.3 sind daher für alle in Tabelle 9.12 identifizierten Referenzbrennstoffe die Werte MVC bei BOL ohne die Berücksichtigung von Bor im Moderator zusammengestellt.

Als erster wesentlicher Punkt kann festgestellt werden, dass der Übergang von 450 kWd/cm³ Zielabbrand zu 300 kWd/cm³ Zielabbrand grundsätzlich zu stärker negativen (bzw. weniger positiven) Werten des MVC führt.⁵ Dies ist auf die mit einem Zielabbrand von 300 kWd/cm³ verbundene geringere anfängliche Pu-Konzentration zurückzuführen. Aufgrund des damit verbundenen besseren Moderationsverhältnisses führt bei diesen Brennstoffen eine Reduzierung der Moderatordichte zu stärker negativen Werten des MVC.

Der Einfluss der verschiedenen BP auf die Werte des MVC(BOL) ist stark unterschiedlich und hängt auch vom Grad der Änderung der Moderatordichte ab. Bei den RPu-IMF führt die Verwendung von Bor oder Europium zu vergleichbaren oder etwas weniger negativen Werten des MVC bei 10% Void. Bei 90% Void liefern beide BP aufgrund der reduzierten Wirksamkeit der BP einen sehr starken positiven Beitrag zum MVC. Bei den WPu-IMF ergeben sich für die BP Bor und Europium bei 10% Void etwas stärker negative Werte des MVC, bei 90% liefern sie jedoch wiederum einen sehr deutlichen positiven Beitrag zum MVC.

Am günstigsten stellt sich der Einsatz von Erbium als BP dar, da die Absorption in Erbium als starkem Resonanzabsorber nicht so stark vom Moderationsverhältnis abhängt wie bei den übrigen thermischen BP. Lediglich für RPEr07020 ergibt sich bei 90% Void ein

⁵Die einzige Ausnahme hierzu stellt der WPu-IMF ohne BP dar, hier ist für 10% Void der Wert des MVC für WPu037 etwas weniger negativ als für WPu053.

300 kWd/cm ³ ($n = 3$)			450 kWd/cm ³ ($n = 4$)		
Brennstoff	MVC(BOL) [pcm/K]		Brennstoff	MVC(BOL) [pcm/K]	
	Void			Void	
	10%	90%		10%	90%
Uran					
Uran29	−100	−573	Uran39	−100	−495
RPu-MOX					
MOXR35	−171	−372	MOXR49	−157	−241
RPu-IMF					
RPu044	−63	−50	RPu064	−53	+5
RPBo04920	−59	+56	RPBo06820	−47	+94
RPEu07540	−81	+86	RPEu09140	−49	+110
RPEr04915	−122	−40	RPEr07020	−104	+44
RPGd04430	+153	+268	RPGd06460	+175	+306
WPu-MOX					
MOXW29	−147	−527	MOXW40	−140	−414
WPu-IMF					
WPu037	−30	−69	WPu053	−33	−38
WPBo04130	−67	−9	WPBo05730	−53	+37
WPEu06860	−71	+30	WPEu07760	−66	+48
WPEr04225	−129	−106	WPEr06240	−122	−9
WPGd03880	+263	+308	WPGd055120	+221	+292

Tabelle 10.3: Zusammenfassung der Werte des Moderator-dichte-Koeffizienten MVC(BOL) der unbestrahlten Referenz-Brennstoffe für 10% bzw. 90% Void ohne Bor im Moderator. Die statistischen Fehler liegen dabei für die Berechnung mit 10% Void bei weniger als 5%, bei 90% Void bei weniger als 1%.

positiver Wert des MVC, für alle anderen Referenzbrennstoffe mit Erbium sind die Werte dagegen negativ. Beim Übergang auf 10% Void ergeben sich mit etwa −100 pcm/% vergleichbare Werte wie bei den Uran-Referenzbrennstoffen, allerdings sind die Werte für 90% Void deutlich weniger negativ. Offen bleibt, ob dies durch die sich im Laufe des Abbrands ergebenden stark negativen Werte für den MVC ausgeglichen wird. Dies kann im Rahmen von Zellrechnungen nicht geklärt werden. Die eindeutig ungünstigsten Werte des MVC ergeben sich demgegenüber bei der Verwendung von Gadolinium als starken thermischen BP. Für alle betrachteten Referenzbrennstoff unter Nutzung von Gadolinium ergeben sich deutlich positive Werte des MVC zwischen +150 pcm/% und +300 pcm/%. Diese sind auf die extrem starke Abnahme der Wirksamkeit des Gadolinium mit abnehmender Moderation zurückzuführen. Wie bereits beim FTC kann also auch aus Sicht des MVC Erbium als besonders günstig für eine Reaktivitätskontrolle bei IMF identifiziert werden, während Gadolinium sich als besonders ungünstig darstellt. Abschließend soll nochmals

die Abhängigkeit der Werte des MVC bei BOL von der anfänglichen Pu-Konzentration (siehe Abbildungen 10.4) bestimmt werden.

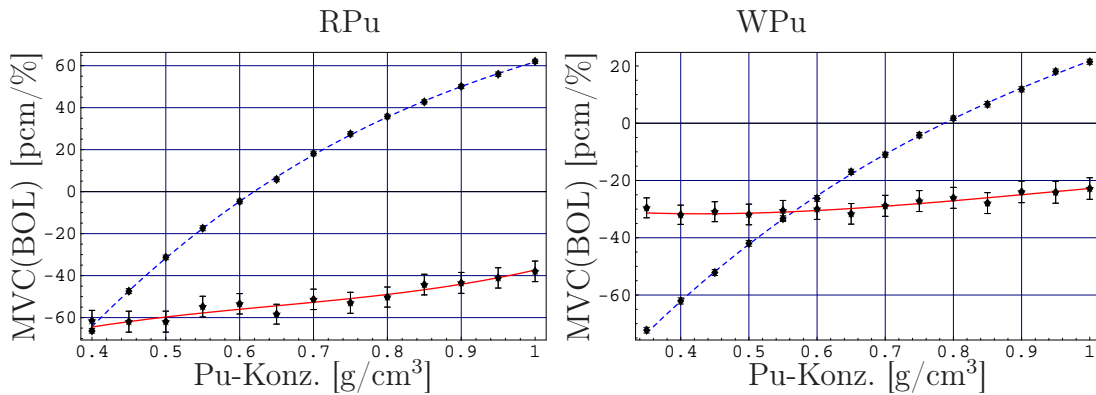


Abbildung 10.4: Abhängigkeit des Moderatorordichte-Koeffizient MVC(BOL) von der Anfangskonzentration des Plutoniums, links für RPu, rechts für WPU. Die Kurven entsprechen einer Reduzierung der Moderatorordichte um 10% (—) bzw. 90% (- -).

Sowohl für RPu- wie WPU-IMF ergeben sich mit steigender Pu-Konzentration stärker positive Werte des MVC(BOL). Dabei ist die Abhängigkeit des MVC beim Übergang zu 10% Void für den hier untersuchten Bereich der Pu-Konzentrationen relativ gering. Beim Übergang zu 90% Void steigen die Werte des MVC jedoch stark an. Bei RPu-IMF ergeben sich ab einer anfänglichen Pu-Konzentration von ca. 0,62 g/cm³ positive Werte des MVC, bei WPU-IMF erst ab einer Konzentration von ca. 0,8 g/cm³. Diese Werte können als ein grober Grenzwert für akzeptable anfängliche Pu-Konzentrationen beim Einsatz von IMF angesehen werden. Daraus leitet sich ab, dass bereits der im Rahmen dieser Arbeit angenommene hohe Zielabbrand von 450 kWd/cm³ für RPu-IMF nur noch unter Vorbehalt als realisierbar angesehen werden kann, für die RPu-IMF muss ggf. ein geringerer Zielabbrand akzeptiert werden. Bei den WPU-IMF würde demgegenüber ein hoher Zielabbrand noch als akzeptabel erscheinen.

Um darüber hinaus noch den notwendigen Einsatz von BP für die Reaktivitätskontrolle zu berücksichtigen, ist in Abbildung 10.5 der Einfluss der Konzentration von Erbium auf den MVC(BOL) für jeweils zwei anfängliche Pu-Konzentrationen sowohl bei RPu-IMF wie bei WPU-IMF dargestellt.

Bei allen vier untersuchten Brennstoff-Typen nimmt der Wert des MVC(BOL) für 10% Void bei einer Erhöhung der Erbium-Konzentration ab, hier erweist sich also die Verwendung von Erbium als günstig. Für einen Übergang zu 90% Void ergeben sich jedoch leicht zunehmende Werte des MVC(BOL). Für den RPER-IMF mit hoher anfänglicher Pu-Konzentration ist MVC(BOL) daher für alle Erbium-Konzentrationen positiv, bei niedriger Pu-Konzentration ergeben sich jedoch bis zu sehr hohen Werten der Erbium-Konzentration von über 0,55 g/cm³ noch negative Werte für MVC(BOL). Bei WPU-Brennstoff mit geringer anfänglicher Pu-Konzentration nimmt für 90% Void der MVC(BOL) bereits bei einer geringen Erbium-Konzentration (0,1 g/cm³) von anfänglich lediglich etwa -30 pcm/% auf ca. -80 pcm/% ab und behält für alle untersuchten Erbium-

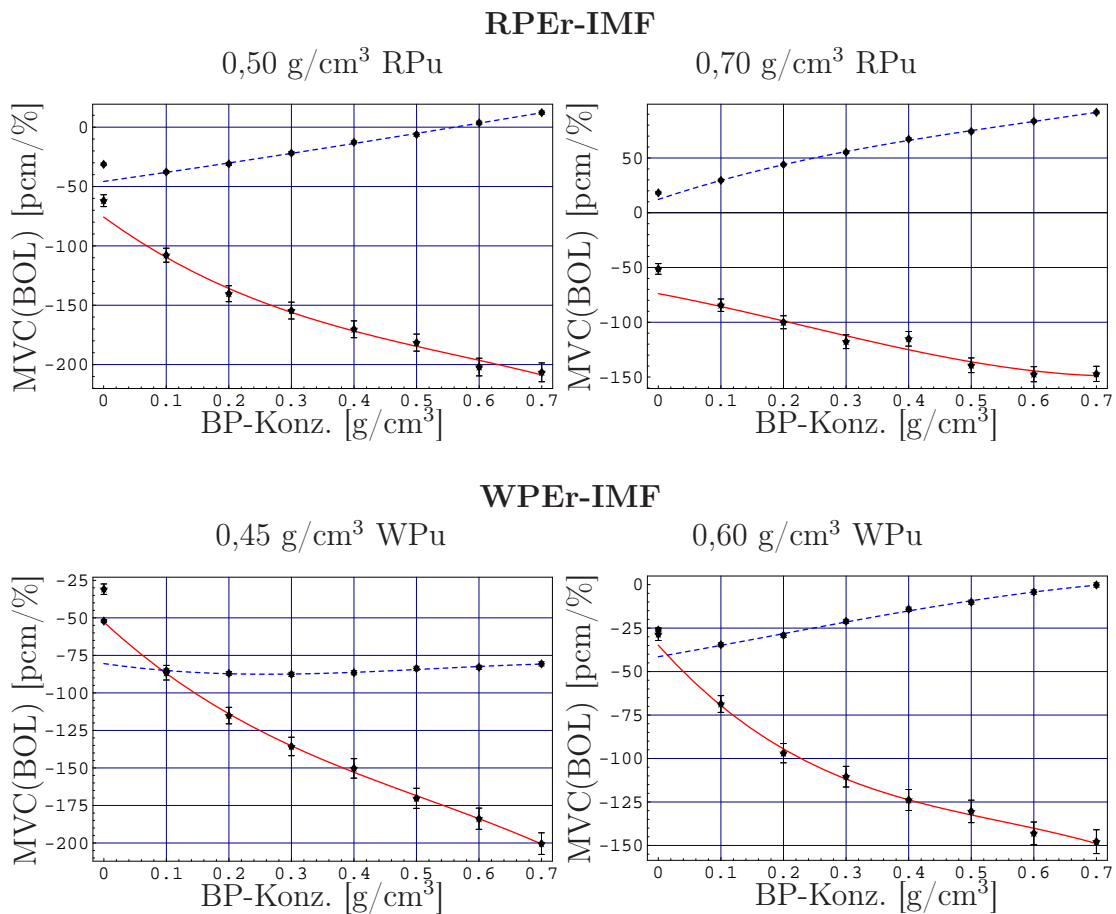


Abbildung 10.5: Abhängigkeit des Moderatorordichte-Koeffizienten MVC(BOL) von der Anfangskonzentration des BP Erbium für RPu-IMF (oben) und WPu-IMF (unten). Die Kurven entsprechen einer Reduzierung der Moderatorordichte um 10% (—) bzw. 90% (- -).

Konzentrationen etwa diesen Wert bei. Bei der hohen Pu-Konzentration von 0,6 g/cm³ nimmt MVC(BOL) mit steigender Erbium-Konzentration zu, allerdings ergeben sich auch hier erst mit sehr hohen Konzentrationen über 0,7 g/cm³ positive Werte des MVC(BOL).

Fazit

Bei IMF ergeben sich für die frischen Brennstoffe deutlich weniger negative Werte für den MVC als bei MOX- oder Uran-Brennstoffen. Es zeigt sich dabei auch eine starke Abhängigkeit von der anfänglichen Pu-Konzentration. Insbesondere für hohe Pu-Konzentrationen und eine geringe Moderatorordichte ergeben sich dabei zum Teil stark positive Werte für den MVC. Hieraus lassen sich ggf. Beschränkungen hinsichtlich einer akzeptablen anfänglichen Pu-Konzentration und damit verbunden des erreichbaren Zielabbrands ableiten. Der Einsatz von BP wirkt sich wie bereits beim FTC unterschiedlich auf die Werte des MVC aus. Wiederum weist Erbium die günstigsten, Gadolinium die ungünstigsten Eigenschaften hinsichtlich der Auswirkungen auf den MVC auf. Insgesamt ist also aus Sicht der

Reaktivitäts-Koeffizienten die Verwendung eines starken Resonanzabsorbers wie Erbium als BP für IMF dringend zu empfehlen.

10.2 Nichtverbreitungsaspekte

10.2.1 Plutoniumkonzentration

Ein wesentlicher Vorteil von IMF im Vergleich zu MOX-Brennstoffen liegt in der Tatsache begründet, dass beim Einsatz von IMF kein neues Plutonium erzeugt, sondern ausschließlich das anfänglich enthaltene Plutonium durch Spaltung beseitigt wird. Damit können diese Brennstoffe deutlich besser zu einem Abbau vorhandener Plutoniummengen beitragen, als dies mit MOX-Brennstoffen möglich ist. Als wesentlicher Indikator für die Bewertung plutoniumhaltiger Brennstoffe wurde in Kapitel 3 daher der Pu-Umsatz bezogen auf den anfänglichen Pu-Gehalt im Brennstoff definiert.

In Abbildung 10.6 ist für verschiedene Brennstoff-Typen exemplarisch der erreichbare Pu-Umsatz in Abhängigkeit vom anfänglichen Pu-Gehalt dargestellt. Dabei ist für alle Brennstoffe jeweils der Pu-Umsatz beim maximal erreichbaren Entladeabbrand B_d für einen Einsatz über 4 Zyklen dargestellt. Sofern der aus Gründen des Reaktivitätsverlaufs erreichbare Abbrand B_d größer als der im Rahmen dieser Arbeit vorgegebene maximale Abbrand von 450 kWd/cm^3 ist, wird der Pu-Umsatz für den maximalen Abbrand von 450 kWd/cm^3 bestimmt.

Für die MOX-Brennstoffe auf RPu- bzw. WPu-Basis ist deutlich erkennbar, dass zunächst mit zunehmendem anfänglichem Pu-Gehalt der erreichbare Pu-Umsatz zunimmt. Hierzu trägt wesentlich bei, dass sich aufgrund des höheren mittleren Pu-Gehalts während des Abbrands bei vorgegebener Leistungsdichte ein geringerer Neutronenfluss ergibt und damit die Pu-Neuproduktion aus U-238 geringer ist. Wird der zum Erreichen des maximalen Abbrands von 450 kWd/cm^3 benötigte Pu-Gehalt überschritten (für MOXR bei 4,9%, für MOXW bei 4,0% Pu-fis), so führt aufgrund der hier gemachten Annahmen eine weitere Erhöhung des anfänglichen Pu-Gehalts nicht zu einer Steigerung des erreichbaren Entladeabbrands B_d . Damit fällt für noch höhere anfängliche Pu-Gehalte der erreichte Pu-Umsatz wieder, ein Maximum ergibt sich jeweils bei dem im letzten Kapitel bestimmten optimalen anfänglichen Pu-Gehalt. Für MOXR49 liegt der erreichbare Pu-Umsatz bei ca. 30%, für MOXW40 bei ca. 35%.

Für IMF ohne brennbare Neutronengifte (rote Kurven in Abbildung 10.6) ergibt sich ein ähnlicher Zusammenhang wie bei den MOX-Brennstoffen. Für die niedrigen anfänglichen Pu-Konzentrationen (bei RPu-IMF unter $0,64 \text{ g/cm}^3$, bei WPu-IMF unter $0,53 \text{ g/cm}^3$) ist der erreichbare Pu-Umsatz praktisch konstant, er liegt für die RPu-IMF bei etwa 77%, für die WPu-IMF werden in den Rechnungen sogar Werte nahe 90% erreicht. Wird die zum Erreichen des vorgegebenen maximalen Abbrands von 450 kWd/cm^3 benötigte Pu-Anfangskonzentration überschritten, so verbleibt ein entsprechend höherer Anteil des Pu im abgebrannten Brennstoff, der erreichbare Pu-Umsatz sinkt mit weiter steigender Pu-Anfangskonzentration.

Der Einfluss der Verwendung von BP auf den erreichbaren Pu-Umsatz wird in Abbildung 10.6 am Beispiel des BP Erbium verdeutlicht. So führt die Verwendung eines BP in der Regel dazu, dass bei vorgegebener anfänglicher Pu-Konzentration nur ein etwas ge-

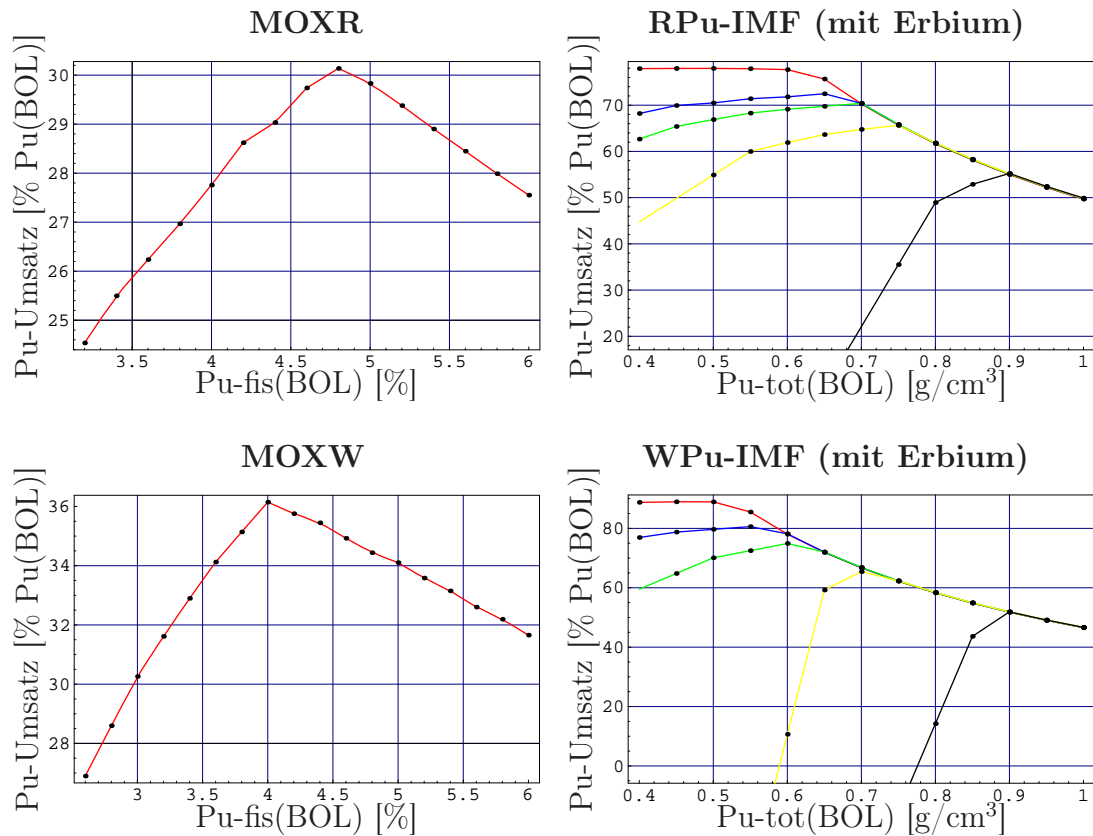


Abbildung 10.6: Prozentualer Pu-Umsatz in Abhängigkeit vom anfänglichen Pu-Gehalt für verschiedene Brennstoff-Typen. Der Pu-Umsatz wurde entweder beim reaktivitätsbedingten maximalen Entladeabbbrand B_d basierend auf einem Einsatz über 4 Zyklen oder beim vorgegebenen maximalen Abbrand von 450 kWd/cm^3 bestimmt. Die roten Kurven entsprechen Brennstoffen ohne BP, die übrigen Kurven entsprechen IMF mit steigenden BP-Konzentrationen (blau, grün, gelb, schwarz), für die zugehörigen BP-Konzentrationen siehe Tabelle 9.7.

ringerer Entladeabbbrand B_d erreicht werden kann (siehe Kapitel 9.2). Da die umgesetzte Pu-Menge proportional zum vorgegebenen Abbrand ist, verringert sich entsprechend der erreichbare Pu-Umsatz. Dabei ist der Effekt mit zunehmendem BP-Anfangsgehalt entsprechend ausgeprägter, der erreichbare Pu-Umsatz nimmt stärker ab (blaue bis schwarze Kurven in Abbildung 10.6). Kann mit der anfänglichen Pu-Konzentration unabhängig von der verwendeten BP-Konzentration der vorgegebene maximale Abbrand von 450 kWd/cm^3 erreicht werden, so wird auch der selbe Pu-Umsatz erreicht, d. h. die Kurven für die verschiedenen BP-Konzentrationen überlagern sich. Der Einfluss eines BP auf den erreichbaren Pu-Umsatz ist also wesentlich dadurch bestimmt, wie hoch der mit der Verwendung eines BP einhergehende Verlust im erreichbaren Entladeabbbrand B_d ist.

In Tabelle 10.4 ist der erreichbare Pu-Umsatz für die verschiedenen MOX und IMF Referenz-Brennstoffe zusammengefasst. Zunächst kann für alle Brennstoff-Typen festgestellt werden, dass für die Referenz-Brennstoffe mit höherem Zielabbrand von 450 kWd/cm^3 der Pu-Umsatz immer über demjenigen des entsprechenden Referenz-

Brennstoffs mit niedrigerem Zielabbrand von 300 kWd/cm^3 liegt. Dabei beträgt der Unterschied zwischen den erreichbaren Pu-Umsätzen bei den MOX-Brennstoffen ca. 7%, bei den IMF-Brennstoffen liegt er zwischen ca. 2% (bei der Verwendung von Erbium als BP) und bis zu 15% (bei WPU-IMF mit Europium). Grundsätzlich ist ein möglichst hoher Zielabbrand anzustreben um einen möglichst hohen Pu-Umsatz zu erreichen.

300 kWd/cm ³ ($n = 3$)		450 kWd/cm ³ ($n = 4$)	
Brennstoff	Pu-Umsatz [% Pu _{ini}]	Brennstoff	Pu-Umsatz [% Pu _{ini}]
MOX			
MOXR35	23,3	MOXR49	30,1
MOXW29	27,2	MOXW40	35,1
RPU-IMF			
RPU044	74,0	RPU064	76,9
RPU04920	66,6	RPU06820	72,5
RPEu07540	44,0	RPEu09140	54,6
RPER04915	66,6	RPER07020	70,4
RPGd04430	74,1	RPGd06460	77,0
WPU-IMF			
WPU037	84,3	WPU053	89,1
WPU04130	75,9	WPU05730	82,4
WPEu06860	45,5	WPEu07760	60,7
WPER04225	74,0	WPER06240	75,6
WPGd03880	82,1	WPGd055120	85,6

Tabelle 10.4: Zusammenfassung des erreichbaren Pu-Umsatzes für die MOX und IMF Referenz-Brennstoffe.

Die sich für die verschiedenen BP ergebenden Werte des erreichbaren Pu-Umsatzes entsprechen den in Kapitel 9.2 festgestellten Unterschieden im erreichbaren Entladeabbrand B_d . So zeigt Gadolinium als BP praktisch keinen Einfluss auf B_d . Entsprechend ist bspw. der Pu-Umsatz bei RPGd06460 mit 77% praktisch identisch zu demjenigen des reinen RPU064. Bei WPGd055120 wird aufgrund der sehr hohen Anfangsreaktivität in den WPU-IMF demgegenüber eine sehr hohe Gd-Konzentration benötigt, so dass hier ein etwa 3,5% niedrigerer Pu-Umsatz festgestellt werden kann. Bei der Verwendung von Bor als BP ist der Einfluss auf B_d und damit den Pu-Umsatz nur geringfügig größer als bei der Verwendung von Gadolinium, die Unterschiede im erreichbaren Pu-Umsatz belaufen sich im Vergleich zu den jeweiligen IMF ohne BP je nach Brennstoff-Typ auf ca. 5-10%. Erbium zeigt demgegenüber mit Differenzen von 7–14% im Pu-Umsatz einen noch stärkeren Einfluss auf den Pu-Umsatz. Entsprechend seinen sehr schlechten Eigenschaften als BP zeigt schließlich Europium den größten Effekt hinsichtlich des erreichbaren Pu-Umsatzes. So sind bei Verwendung von Europium im Vergleich zu den reinen IMF um 20–40% geringere Werte des Pu-Umsatzes erzielbar.

Fazit

Die Verwendung von IMF würde eine sehr weit gehende Reduktion des anfänglichen Pu-Gehalts von 75–90% erlauben, im Gegensatz zu derjenigen bei MOX-Brennstoffen welche im Bereich von 25–35% liegt. Dabei kann bei höheren Zielabbränden auch ein größerer Pu-Umsatz erzielt werden. Sofern brennbare Neutronengifte den erreichbaren Zielabbrand bei vorgegebenen Pu-Anfangskonzentration reduzieren, wirkt sich ihr Einsatz auch negativ auf den erreichbaren Pu-Umsatz aus. Für realistische BP-Konzentrationen ist jedoch dennoch ein Pu-Umsatz von 65–80% denkbar.

10.2.2 Plutonium-Isotopenzusammensetzung, Wärme- und Neutronenrate

Neben der Menge des umgesetzten Plutoniums ist für eine Bewertung aus Sicht der nuklearen Nichtverbreitung auch die Qualität des verbleibenden Plutoniums von wesentlicher Bedeutung. Hierzu können, wie in Kapitel 3.5 dargestellt, als wesentliche Indikatoren die vom verbleibenden Plutonium produzierte Wärmemenge und die Rate der Neutronen aus Spontanspaltung herangezogen werden. Nach Tabelle C.1 ist sowohl die Wärmerate wie die Neutronenproduktion des Pu-239 sehr gering, wesentlich tragen demgegenüber die Isotope Pu-240 und Pu-238 zu diesen Größen bei. Daher bestimmt die Isotopenzusammensetzung des im abgebrannten Brennstoff verbleibenden Plutoniums dessen Eigenschaften in dieser Hinsicht. In Abbildung 10.7 ist die abbrandabhängige Konzentration der verschiedenen Pu-Isotope sowie der gesamte Pu-Gehalt im Brennstoff am Beispiel der vier Referenz-Brennstoffe ohne BP zum Zielabbrand von 450 kWd/cm³ dargestellt.

Beim MOX-Brennstoff mit RPu nimmt der Pu-239-Gehalt im Laufe des Abbrands etwa linear ab, die Neuproduktion aus U-238 liegt unter dem Verbrauch durch Spaltung und Umwandlung in Pu-240. Demgegenüber wird deutlich, dass sich die Isotope Pu-240 und Pu-241 bereits nahezu in einem Gleichgewichtszustand befinden, ihre Konzentration ändert sich über den gesamten Abbrand hinweg nur um wenige Prozent. Bei EOL hat die Konzentration des Pu-240 um 10% abgenommen, diejenige des Pu-241 um 10% zugenommen. Auch für das Isotop Pu-238 ist bei MOXR49 im Laufe des Abbrands die Konzentration nahezu unverändert, bei EOL liegen noch 95% des anfänglichen Pu-238 Gehalts vor. Lediglich Pu-242 wird im Laufe des Abbrands stark aufgebaut, seine Konzentration liegt bei EOL um 60% über dem Anfangsgehalt. Bezogen auf die Gesamtmenge des verbleibenden Plutoniums bedeutet dies, dass der relative Anteil des Pu-238 von anfänglich 1,8% auf 2,4% bei EOL steigt, derjenige des Pu-240 von 23% auf 30%. Der Anteil des Pu-239 ist demgegenüber von anfänglich 59% auf 40% gesunken.

Für das entsprechende IMF RPu064 ergibt sich etwa bis zur Mitte des Abbrands ein vergleichbares Bild, auch hier weisen die Isotope Pu-240 und Pu-241 etwa ein Gleichgewicht auf. Mit zunehmender Reduktion des Pu-239 nimmt jedoch auch die Neuproduktion dieser Isotope sehr stark ab, so dass es in der zweiten Hälfte des Abbrands bei RPu064 zu stärkeren Verschiebungen der Isotopenzusammensetzung des Pu kommt. Bei EOL sind

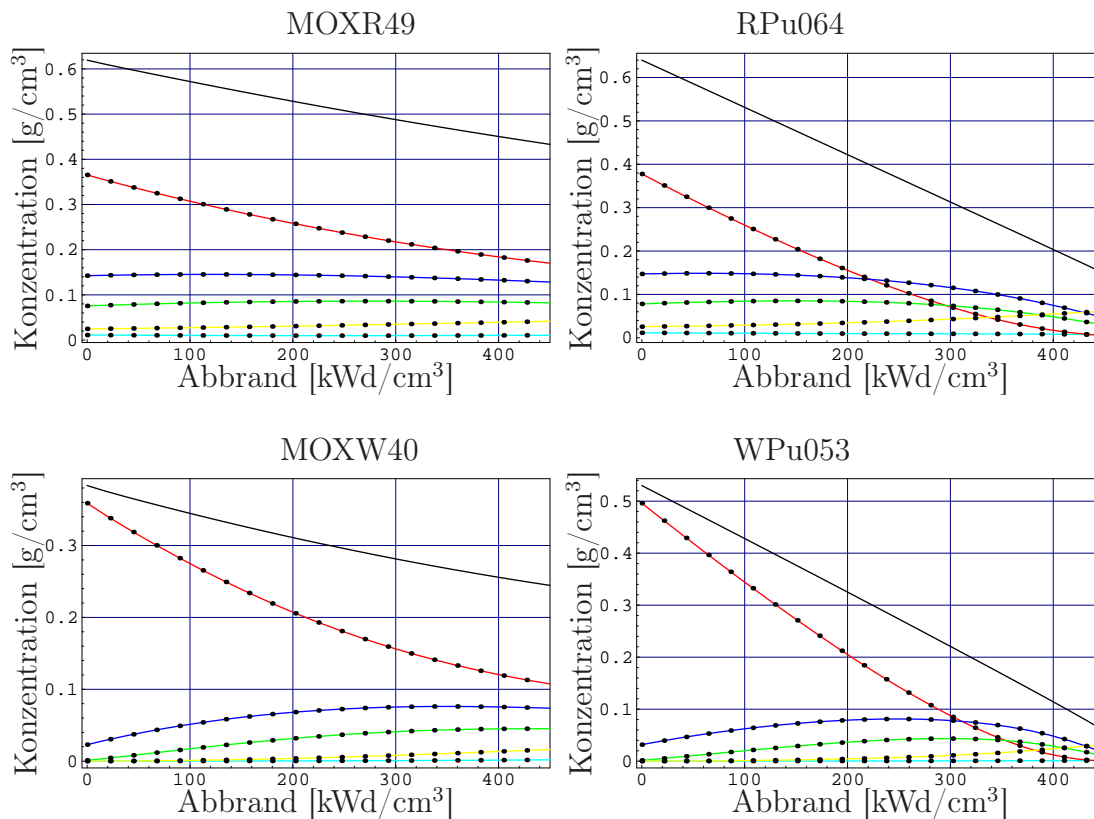


Abbildung 10.7: Abbrandabhängiger Plutoniumgehalt der Referenzbrennstoffe für RPu (300 bzw. 450 kWd/cm³). Dargestellt ist der Gesamtgehalt Pu (schwarz), Pu-239 (rot), Pu-240 (blau), Pu-241 (grün), Pu-242 (gelb) und Pu-238 (türkis).

nahezu 99% des anfänglichen Pu-239 abgebaut, auch die Werte von Pu-240 und Pu-241 fallen auf jeweils nur noch ca. 30% der Anfangskonzentration des jeweiligen Isotops, bei Pu-238 verbleiben noch 60%. Lediglich für Pu-242 nimmt die im Brennstoff enthaltene Menge über den gesamten Abbrand zu, bei EOL liegt dessen Konzentration um einen Faktor 2,4 über der Anfangskonzentration. Für die Isotopenzusammensetzung des verbleibenden Pu bedeutet diese eine extreme Verschiebung, Pu-239 trägt nur noch mit etwa 3% zum verbleibenden Pu bei, der Anteil des Pu-240 beläuft sich auf ca. 30%. Auch der relative Anteil des Pu-238 ist von anfänglich 1,8% auf nunmehr ca. 4,7% angestiegen. Den Hauptanteil des verbleibenden Plutoniums liefert Pu-242 mit knapp 42%.

Da bei den Brennstoffen auf WPU-Basis anfänglich praktisch nur Pu-239 im Brennstoff enthalten ist, lässt sich bei diesen eine wesentlich stärkere Änderung als bei den RPU-Brennstoffen feststellen. Bereits bei MOXW40 nimmt der anfängliche Pu-239-Gehalt um immerhin ca. 70% ab. Die Konzentration des Pu-240, das bei BOL einen Anteil von etwa 6% am Pu hat, nimmt in der ersten Hälfte des Abbrands stark zu und erreicht erst im letzten Drittel etwa einen Gleichgewichtszustand, bei EOL liegt die Pu-240 Konzentration um ca. einen Faktor 3,2 über derjenigen bei BOL. Die Konzentration des Pu-241 nimmt über den gesamten Abbrand zu und liegt bei EOL sogar um einen Faktor 40 über derjenigen bei BOL. Auch die Menge des Pu-238, welches im anfänglichen WPU fast gar nicht

enthalten ist, wird um einen Faktor von ca. 9 erhöht. Trotz dieser starken Zunahme der Absolutwerte der Pu-Isotope außer Pu-239 liegt der Anteil des Pu-239 am Gesamtplutonium bei EOL immer noch bei 45% und ist damit nicht wesentlich geringer als bspw. bei unbestrahltem RPu. Während der Anteil des Pu-240 am Gesamtplutonium mit ca. 30% etwas höher ist als in unbestrahltem RPu, ist der Anteil des Pu-238 mit lediglich 0,7% immer noch deutlich geringer als in unbestrahltem RPu.

In WPu053 schließlich wird der anfängliche Pu-239-Gehalt praktisch vollständig abgebaut. Auch die Konzentration der Isotope Pu-240 und Pu-241 steigt im Laufe des Abbrands zunächst an, bei ca. 250 bis 300 kWd/cm³ Abbrand wird ein Maximum durchlaufen und im letzten Drittel des Abbrands werden diese Isotope wiederum deutlich reduziert. Im Maximum wäre der Gehalt des Pu-240 um ca. einen Faktor 2,6 höher als bei BOL, bei EOL verbleiben jedoch wiederum nur ca. 50% des Anfangsgehalts. Die Menge des Pu-238 nimmt im Laufe der Bestrahlung zu und liegt bei EOL um einen Faktor 3,3 über dem Wert bei BOL. Bezogen auf die relative Plutoniumzusammensetzung bei EOL ist der Pu-239 Anteil mit ca. einem Prozent extrem gering. Das Pu-240 weist mit einem Anteil von 27% etwa die gleiche Größenordnung auf wie in unbestrahltem RPu, ebenso liegt Pu-238 mit 1,5% sehr nahe an den Werten von unbestrahltem RPu. Allerdings macht das in RPu nur zu einem Anteil von 4% vorliegende Pu-242 bei dem in WPu053 bei EOL verbliebenen Plutonium mit deutlich über 50% den größten Anteil aus, so dass die Eigenschaften dieses Plutoniums sehr stark von denjenigen des ursprünglichen WPu abweichen.

Um den Einfluss dieser Änderungen der Zusammensetzung des Plutoniums auf die oben genannten Indikatoren der Wärme- und Neutronenrate zu verdeutlichen, ist in Abbildung 10.8 am Beispiel der beiden Referenzbrennstoffe für RPu ohne BP der abbrandabhängige Verlauf des totalen Plutoniumgehalts im Brennstoff sowie der zugehörigen Wärme- und Neutronenrate des verbleibenden Plutoniums dargestellt.

Wie bereits diskutiert nimmt bei MOXR49 der Pu-Gehalt im Laufe des Abbrands linear auf ca. 70% des anfänglichen Gehalts ab. Gleichzeitig steigt die mit dem verbleibenden Plutonium verbundene Wärmerate von anfänglich 13,3 W/kg(Pu) auf 17,0 W/kg(Pu), entsprechend einer Steigerung um 27%. Auch die Neutronenrate des verbleibenden Plutoniums nimmt insbesondere im zweiten Teil des Abbrands zu und steigt von anfänglich $3,2 \cdot 10^5$ Neutronen/(s·kg(Pu)) auf $4,9 \cdot 10^5$ Neutronen/(s·kg(Pu)) bei EOL, entsprechend einer Steigerung um einen Faktor 1,5.

Auch für RPu064 nimmt der Pu-Gehalt praktisch linear während des gesamten Abbrands ab, allerdings ist die Rate der Pu-Reduktion ca. doppelt so hoch wie in MOXR49. Bei EOL verbleiben daher wie bereits oben diskutiert nur noch ca. 30% des anfänglichen Plutoniums. Aufgrund der besonders starken Reduktion des Pu-239 werden bei diesem Brennstoff auch entsprechend starke Änderungen der Wärme- und Neutronenrate des verbleibenden Plutoniums erzielt. So steigt die Wärmerate bis EOL auf 29,1 W/kg(Pu), entsprechend einer Steigerung um einen Faktor 2,2, die Neutronenrate liegt bei EOL sogar bei $11,1 \cdot 10^5$ Neutronen/(s·kg(Pu)) und ist damit um einen Faktor 3,4 höher als bei unbestrahltem RPu.

Bei diesem Brennstoff wird auch der besonders starke Anstieg der Wärme- und Neu-

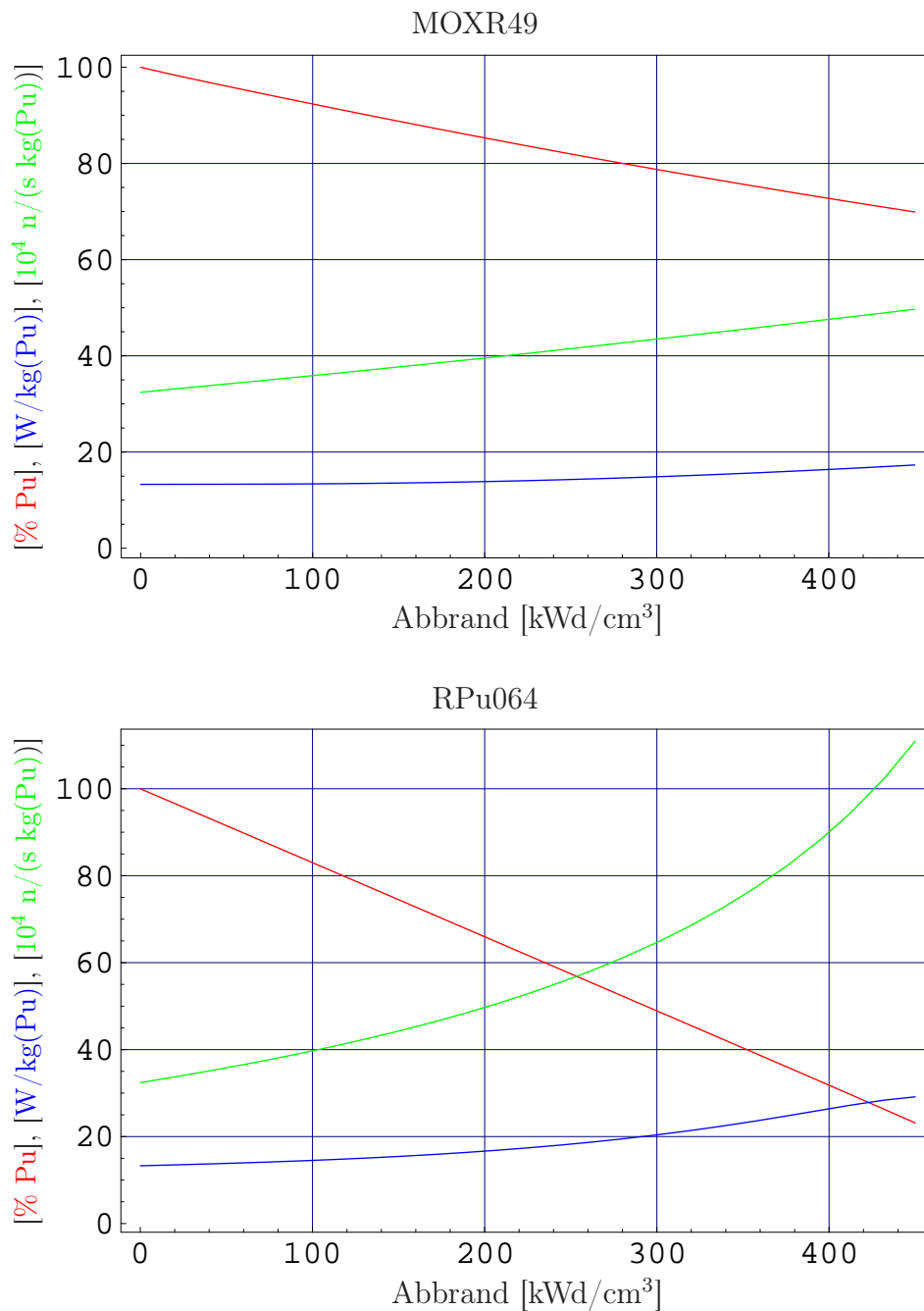


Abbildung 10.8: Abbrandabhängigkeit von Plutoniumgehalt (rot), Neutronen- (grün) und Wärmerate (blau) des Plutoniums in den Referenzbrennstoffen MOXR49 bzw. RPu064.

tronenrate im letzten Teil des Abbrands deutlich. So liegt zur Mitte des Abbrands bei 225 kWd/cm^3 der Wert der Wärmerate nur um 30% über dem Wert bei BOL, die Neutronenrate um einen Faktor 1,6. Diese Werte entsprechen nahezu der mit MOX-Brennstoff realisierten Änderung der Isotopenzusammensetzung. Durch die weitere Bestrahlung verschieben sich, insbesondere durch den sehr weitgehenden Abbau des Pu-239, die Werte der relevanten Indikatoren dagegen nochmals sehr stark. Da in Bezug auf die Eigenschaften

des verbleibenden Plutoniums insbesondere der letzte Teil des Abbrands von besonderer Bedeutung ist, wird hierdurch nochmals deutlich, dass eine Optimierung des erreichbaren Zielabbrands B_d bei vorgegebenem anfänglichem Pu-Gehalt, wie er im Rahmen dieser Arbeit verfolgt worden ist, von besonderer Bedeutung für die Qualität der Umsetzung des Plutoniums ist.

10.3 Zusammenfassende Darstellung der wesentlichen Brennstoffeigenschaften

Abschließend sollen nun noch einmal die wesentlichen Eigenschaften verschiedener wichtiger Referenzbrennstoffe im Überblick zusammengestellt und diskutiert werden. Dabei soll die Diskussion sich an dieser Stelle auf Referenzbrennstoffe zu einem Zielabbrand von 450 kWd/cm^3 beschränken. Wesentliche Unterschiede der relevanten Indikatoren beim Übergang zu geringeren Zielabbränden sind in den letzten Abschnitten dieses Kapitels anhand des Vergleichs mit den Referenzbrennstoffen zu einem Abbrand von 300 kWd/cm^3 bereits diskutiert worden und müssen daher an dieser Stelle nicht nochmals vertieft werden.

Die wesentlichen Indikatoren zur Bewertung der Referenzbrennstoffe wurden in Kapitel 3 eingeführt und umfassen sowohl Sicherheitsaspekte (mittlere Bor-Wirksamkeit BWC_{av} , Brennstoff-Temperaturkoeffizient FTC und Moderator-dichte-Koeffizient MVC) wie Nicht-verbreitungsaspekte (erzielter Pu-Umsatz, Konzentration des im abgebrannten Brennstoff verbleibenden Pu, Wärme- und Neutronenrate des verbleibenden Pu).

Wie in den letzten Abschnitten diskutiert, führt die Verwendung von Bor oder Europium nicht zu spezifischen Vorteilen im Vergleich zur Verwendung von Gadolinium oder Erbium. Daher werden in Tabelle 10.5 nur die Referenzbrennstoffe für diese beiden BP zusammengefasst. Dabei wurden diejenigen Referenzbrennstoffe ausgewählt, bei denen die BP-Konzentration ausreicht, um den maximalen Bor-Bedarf im Laufe des Abbrands auf Werte von unter 2000 ppm zu reduzieren (siehe Kapitel 9.5.3). Zum Vergleich mit denjenigen Brennstoffen, die bei BOL Plutonium als spaltbares Material enthalten, sind darüber hinaus die Eigenschaften eines Uran-Brennstoffs für den Zielabbrand von 450 kWd/cm^3 angegeben.

Bezüglich der Sicherheitsindikatoren kann festgehalten werden, dass Uran39 mit einem Wert des $BWC_{av}(BOC)$ von $-7,2 \text{ pcm/ppm}$ den am stärksten negativen Wert aller untersuchten Referenzbrennstoffe aufweist. Da dieser Wert neben seiner Bedeutung für die Reaktivitätskontrolle (siehe Kapitel 8) auch in erster Näherung als Indikator für die Wirksamkeit von Steuerstäben dienen kann, ist deutlich, dass alle plutoniumhaltigen Brennstoffe — sowohl MOX wie IMF — deutlich höhere Anforderungen an die Reaktorsteuerung stellen als herkömmliche Uran-Brennstoffe. Die Unterschiede zwischen den plutoniumhaltigen Brennstoffen untereinander sind im Vergleich hierzu gering, auch wenn zwischen dem niedrigsten Wert bei MOXR49 mit $-3,0 \text{ pcm/ppm}$ und dem höchsten bei WPu053 mit $-4,6 \text{ pcm/ppm}$ noch ein Faktor von ca. 1,5 liegt.

Deutlicher fallen dagegen die Unterschieden in den Werten des FTC(BOL) aus. So weisen die beiden MOX-Brennstoffe einen im Vergleich zu Uran39 deutlich stärker negativen Wert auf. Alle IMF zeigen demgegenüber, aufgrund des fehlenden negativen Beitrags des U-238 zum FTC, deutlich weniger negative Werte des FTC. Diese können weiterhin zumindest für den ersten Teil des Abbrands durch das Verwenden eines BP beeinflusst werden. So führt der Einsatz von Gadolinium aufgrund des damit verbundenen deutlich härteren Neutronenspektrums zu Werten des FTC nahe Null. Ein stärker negativer FTC kann demgegenüber durch die Verwendung von Erbium als BP erzielt werden. Mit $-1,6$ pcm/K bzw. $-1,7$ pcm/K weichen beide Referenzbrennstoffe mit Erbium als BP nur noch knapp vom Wert des Uran39 mit $-2,1$ pcm/K ab.

Hinsichtlich des MVC(BOL) ergeben sich ähnliche Schlussfolgerungen wie für den FTC(BOL). Hier weisen die MOX-Brennstoffe bei einer geringen Änderung der Moderatorichte um 10% etwas stärker negative Werte des MVC auf als Uran39. Bei einer starken Reduzierung der Moderatorichte um 90% ergeben sich jedoch mit zunehmendem Plutoniumgehalt immer weniger negative Werte für den MVC. Insbesondere bei den RPu-IMF ergeben sich bereits bei den hier untersuchten Pu-Konzentrationen positive Werte für den MVC. Die Verwendung von Erbium als BP beeinflusst die Werte des MVC nur unwesentlich, hier liefert vor allem die notwendige Erhöhung des anfänglichen Pu-Gehalts einen positiven Beitrag zum MVC. Demgegenüber trägt Gadolinium jedoch mit einem sehr großen positiven Beitrag zum MVC bei. Dieser schlägt sich sowohl bei einer geringen wie einer hohen Änderung der Moderatorichte nieder und führt bei den beiden hier betrachteten Referenzbrennstoffen zu deutlich positiven Werten des MVC(BOL) zwischen $+175$ pcm/% und $+306$ pcm/%.

Der untersuchte Brennstoff Uran39 enthält bei EOL $0,11$ g/cm³ Plutonium. Hinsichtlich seiner Nichtverbreitungseigenschaften ist dieses Plutonium von etwas schlechterer Qualität als heutiges RPu, da der Zielabbrand ca. 25% über den bislang üblichen Abbränden liegt und daher der Anteil des Isotops Pu-239 im enthaltenen Plutonium geringer ist als in RPu. Der auf RPu basierende Referenzbrennstoff MOXR49 enthält demgegenüber bei EOL noch $0,43$ g/cm³ Pu, also fast viermal soviel wie im abgebrannten Uran-Brennstoff. Die Reduktion des Plutoniumgehalts um ca. $0,2$ g/cm³ entspricht etwa der doppelten Menge des in Uran39 produzierten Plutoniums. Die Wärme- und Neutronenrate dieses Pu liegt um 30% bzw. 50% über derjenigen des anfänglichen RPu, diese Werte sind allerdings praktisch vergleichbar zu denjenigen von Pu aus Uran39, was auf den gewählten hohen Abbrand zurückzuführen ist. Könnte ein IMF mit RPu ohne BP verwendet werden, so muss dieses eine etwas höhere Anfangskonzentration von Pu enthalten als der vergleichbare MOX-Brennstoff. Im abgebrannten RPu064 ist die Pu-Konzentration mit $0,15$ g/cm³ jedoch vergleichbar hoch wie in Uran39. Die Menge des reduzierten Plutoniums entspricht der vier- bis fünffachen Menge des in Uran39 erzeugten Plutoniums. Die Eigenschaften des verbleibenden Pu sind jedoch auch im Vergleich zu demjenigen aus MOXR49 noch deutlich verschlechtert, sowohl die Wärme- wie die Neutronenrate liegt nochmals um einen Faktor von ca. zwei über derjenigen von Pu aus Uran39. Bei der Verwendung von Gadolinium als BP würden sich die Eigenschaften des IMF hinsichtlich des Pu-Umsatzes und der Qualität des verbleibenden Plutoniums im Vergleich zu RPu064 nicht ändern. Wird Erbium als BP verwendet, so muss der anfängliche Pu-Gehalt im Vergleich zu RPu064

um ca. 10% gesteigert werden. Entsprechend ist auch die Menge des im abgebrannten RPEr07020 enthaltenen Pu mit $0,21 \text{ g/cm}^3$ um ca. ein Drittel größer als in RPu064 und liegt um ca. einen Faktor zwei über derjenigen von Uran39. Auch bei diesem Brennstoff ist allerdings die Qualität des verbleibenden Plutoniums gegenüber RPu deutlich reduziert, was die Abzweigung eines solchen Plutoniums für Kernwaffenzwecke als deutlich unattraktiver erscheinen lässt.

Soll WPU in einem MOX-Brennstoff eingesetzt werden, so sind aufgrund des geringeren Anteils an thermisch nicht spaltbaren Plutoniumisotopen zum Erreichen des Zielabbrands nur etwa 60% des anfänglichen Pu-Gehalts von MOXR49 notwendig. Der Gehalt des Plutoniums im abgebrannten MOXW40 liegt mit $0,25 \text{ g/cm}^3$ entsprechend zwischen demjenigen von Uran39 und MOXR49, die Plutoniumreduktion in diesem Brennstoff entspricht etwa der in Uran39 produzierten Plutoniummenge. Trotz der in Bezug auf die anfänglich sehr hohe Qualität des Plutoniums drastischen Verschlechterung der Isotopenzusammensetzung ist das verbleibende Plutonium hinsichtlich der Nichtverbreitungseigenschaften noch etwa vergleichbar mit heutigem RPu. Einer im Vergleich zu RPu etwas höheren Neutronenrate steht eine etwas geringere Wärmerate gegenüber. Dies ist darauf zurückzuführen, dass zwar die schweren Pu-Isotope Pu-240–Pu-242 durch Neutroneneinfang aus dem anfänglichen Pu-239 aufgebaut werden, jedoch der Anteil des Pu-238, welches besonders stark zur Wärmeproduktion beiträgt, sehr gering bleibt. Der entsprechende IMF mit WPU benötigt zum Erreichen des selben Abbrands ca. 40% mehr anfängliches Plutonium als MOXW40. Aufgrund des sehr hohen Pu-Umsatzes verbleiben in diesem Brennstoff nur $0,06 \text{ g/cm}^3$ Plutonium, entsprechend etwa der Hälfte des Gehalts in abgebranntem Uran39. Auch in diesem Brennstoff ändert sich die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums drastisch, die Wärmerate des verbleibenden Pu entspricht etwa derjenigen von unbestrahltem RPu, die Neutronenrate liegt mit $12,1 \cdot 10^5 \text{ Neutronen/(s} \cdot \text{kg(Pu))}$ ca. einen Faktor 20 über derjenigen von WPU und damit einen Faktor 3,7 über RPu. Auch bei IMF mit WPU führt die Verwendung von Gadolinium als BP nicht zu wesentlichen Veränderungen hinsichtlich des erzielbaren Pu-Umsatzes oder der Eigenschaften des verbleibenden Plutoniums. Bei der Verwendung von Erbium als BP muss der anfängliche Pu-Gehalt in WPU-IMF um ca. 15% gesteigert werden. Anstelle des sehr hohen Pu-Umsatzes von 90% bei WPU053 ist mit WPEr06240 nur eine Reduktion um 75% erreichbar, diese ist jedoch immer noch über einen Faktor zwei höher als bei MOXW40. Die Wärmerate des verbleibenden Plutoniums beläuft sich auf ca. 70% des Wertes von RPu. Die Neutronenrate ist nur etwa halb so groß wie in abgebranntem WPU053, liegt damit aber immer noch etwa um einen Faktor zwei über derjenigen von RPu.

Fazit

Die hier untersuchten Sicherheitsindikatoren favorisieren damit eindeutig die Verwendung von Erbium als BP bei einem möglichen Einsatz von IMF. Aufgrund der nur noch sehr schwach negativen oder sogar positiven Werte des MVC könnten Brennstoffe mit einer geringeren anfänglichen Plutoniumkonzentration und damit verbunden geringeren Werten des MVC(BOL) günstigere Eigenschaften aufweisen als die hier betrachteten Referenzbrennstoffe. Damit scheint auch aus Sicht der untersuchten Reaktivitätskoeffizienten die

im Rahmen dieser Arbeit vorgenommene Beschränkung des untersuchten Zielabbrands auf einen Wert von 450 kWd/cm^3 aufgrund des damit verbundenen bereits recht hohen anfänglichen Pu-Gehalts gerechtfertigt.

Hinsichtlich der untersuchten Nichtverbreitungseigenschaften weisen die betrachteten IMF eindeutige Vorteile gegenüber der Verwendung von MOX-Brennstoffen auf. Auch wenn die theoretisch mit einem IMF ohne BP erreichbaren Werte bezüglich des Pu-Umsatzes bei der Verwendung von Erbium als BP nicht ganz erreicht werden können, sind doch die Unterschiede zwischen einem IMF mit Erbium als BP und einem MOX-Brennstoff mit gleichem Zielabbrand immer noch sehr ausgeprägt. Neben einem wesentlich erhöhten Pu-Umsatz reduzieren sowohl die niedrigere verbleibende Pu-Konzentration im IMF wie die ungünstigen Eigenschaften des verbleibenden Plutoniums die Attraktivität des abgebrannten Brennstoffs für eine Abzweigung von Plutonium für Kernwaffenzwecke.

Brennstoff	Abbrand [kWd/cm ³]	Pu-tot [g/cm ³]	Pu-239 [g/cm ³]	Wärmerate [W/kg(Pu)]	n-Rate [n/(s·g(Pu))]	BWC _{av} (BOC) [pcm/ppm]	FTC(BOL) [pcm/K]	MVC(BOL) (10%/90%) [pcm/%]
Uran								
Uran39	450	0,11	0,05	17,8	420	−7,2	−2,1	−100/−495
RPu								
MOXR49	0	0,62	0,37	13,3	324	−3,0	−3,0	−157/−241
	450	0,43 −30,1%	0,17 −53,5%	17,3 ×1,30	497 ×1,53			
RPu064	0	0,64	0,38	13,3	324	−4,2	−1,1	−52,6/+4,8
	450	0,15 −76,9%	0,00 −98,7%	29,1 ×2,19	1110 ×3,42			
RPGd06460	0	0,64	0,38	13,3	324	−4,0	−0,6	+175/+306
	450	0,15 −77,0%	0,01 −98,6%	30,0 ×2,26	1107 ×3,42			
RPEr07020	0	0,70	0,41	13,3	324	−3,7	−1,6	−104/+43,7
	450	0,21 −70,4%	0,02 −96,1%	28,6 ×2,15	925 ×2,85			
WPu								
MOXW40	0	0,38	0,36	2,48	57	−4,0	−2,8	−140/−414
	450	0,25 −35,1%	0,11 −68,8%	7,5 ×3,02	395 ×6,95			
WPu053	0	0,53	0,50	2,48	57	−4,6	−0,9	−32,9/−37,7
	450	0,06 −89,1%	0,00 −99,9%	11,1 ×4,47	1210 ×21,31			
WPGd055120	0	0,55	0,51	2,48	57	−4,0	±0,0	+221/+292
	450	0,08 −85,6%	0,00 −99,5%	12,12 ×4,89	1011 ×17,82			
WPEr06240	0	0,62	0,58	2,48	57	−3,7	−1,7	−122/−9,1
	450	0,15 −75,6%	0,03 −95,5%	9,73 ×3,93	653 ×11,51			

Tabelle 10.5: Zusammenfassung der wesentlichen Eigenschaften wichtiger Referenzbrennstoffe.

Kapitel 11

Zusammenfassung

Diese Arbeit untersucht das Potenzial uranfreier Brennstoffe (inert matrix fuel, IMF) für einen Abbau vorliegender Plutoniumbestände. Da bei IMF eine Neuproduktion von Plutonium aus Uran vermieden wird, stellen solche Brennstoffe eine interessante Alternative zu den gegenwärtig genutzten Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoffen (MOX) dar. Als Basis für eine Bewertung von IMF im Vergleich mit MOX-Brennstoff wurden umfangreiche neutronenphysikalische Simulationsrechnungen solcher Brennstoffe durchgeführt. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit das Programmsystem MCMATH entwickelt, welches eine weitestgehend automatisierte Berechnung des Abbrandverhaltens und der Reaktivitätskoeffizienten einzelner Brennstoffe ermöglicht. Anhand der damit durchgeführten Berechnungen wird ein kriteriengeleiteter Vergleich von MOX-Brennstoff und IMF durchgeführt. Dieser zeigt die besondere Attraktivität von IMF. Darüber hinaus werden jedoch auch noch offene Fragen hinsichtlich einer zukünftigen endgültigen Bewertung aufgeworfen.

Es liegen heute im militärischen Bereich etwa 260 t separiertes Plutonium (Waffenplutonium, WPu) vor. Im zivilen Bereich wird etwa die selbe Menge Plutonium (Reaktorplutonium, RPu) gelagert, wobei diese Menge in den letzten Jahren kontinuierlich angestiegen ist. Nur etwa 10 t Plutonium werden zur Zeit pro Jahr wieder als MOX-Brennstoff in Leichtwasserreaktoren (LWR) eingesetzt. Aufgrund seiner potenziellen Rolle als kernwaffenfähiges Material sind bei Optionen zum Umgang mit Plutonium besonders Aspekte der nuklearen Nichtverbreitung mit zu berücksichtigen. In der Vergangenheit wurde eine große Zahl verschiedener Optionen für den Umgang mit Plutonium untersucht. Diese Arbeit konzentriert sich auf einen Vergleich der zwei verschiedenen Brennstoffvarianten MOX und IMF für einen Einsatz von Plutonium in existierenden LWR. Als Standard für die durchgeführten Untersuchungen wird dabei eine international als besonders attraktiv diskutierte Brennstoffmatrix für IMF, Yttrium stabilisiertes Zirkoniumdioxid ((Y,Zr)O₂), ausgewählt.

Um einen quantitativen Vergleich von MOX-Brennstoff und IMF zu ermöglichen, wurden in Kapitel 3 verschiedene Ansätze für eine kriteriengeleitete Bewertung von Optionen zum Umgang mit Plutonium berücksichtigt. Auf dieser Basis lassen sich folgende Kriterien identifizieren: technische Machbarkeit, politisch-gesellschaftliche Akzeptanz, Umwelt-

und Sicherheitsaspekte, Aspekte der nuklearen Nichtverbreitung und der Wirtschaftlichkeit. Hieraus werden wichtige Indikatoren für den Vergleich von MOX-Brennstoff und IMF abgeleitet. In Bezug auf die technische Machbarkeit sind dies Aspekte der Reaktivitätskontrolle, hinsichtlich des Bereiches Sicherheit sind die abbrandabhängigen Werte der Reaktivitätskoeffizienten relevant. Für die zentrale Frage der Bewertung von Nichtverbreitungseigenschaften spielen der Anteil des umgesetzten Plutoniums und die Qualität des verbleibenden Plutoniums, ausgedrückt durch die erzeugte Wärmerate und den Neutronenhintergrund aus Spontanspaltungen, eine wesentliche Rolle.

Um zu Aussagen hinsichtlich dieser Indikatoren zu kommen, wurden abbrandabhängige Eigenschaften von MOX-Brennstoff und IMF bestimmt. Dies war mit existierenden Zell-Abbrandprogrammen nicht ohne weiteres möglich, da deren Datenbasis zumeist für konventionelle Brennstoffe erstellt wurde. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit das Programmsystem MCMATH entwickelt und validiert. Wie in Kapitel 4 dargestellt, basiert das Programmsystem MCMATH auf einer Kopplung des Neutronentransportprogramms MCNP mit *Mathematica*-Routinen. Dabei dient *Mathematica* zur Berechnung der zeitabhängigen Brennstoffzusammensetzung auf der Basis der mit MCNP bestimmten effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte. Darüber hinaus wird MCNP dazu genutzt, verschiedene relevante Reaktivitätskoeffizienten zu unterschiedlichen Abbrandzeitpunkten zu bestimmen. In einem direkten Vergleich mit MCODE, einem vergleichbaren Programmsystem, das am Massachusetts Institute of Technology etwa zeitgleich entwickelt wurde, wird die hohe Genauigkeit und Effizienz von MCMATH demonstriert.

Davon unabhängig ist für die Validierung eines umfassenden Programmsystems wie MCMATH ein möglichst breiter Vergleich mit anderen Programmsystemen sinnvoll. Zu diesem Zweck wurden verschiedene internationale Benchmarks für eine Validierung von MCMATH herangezogen. Die erzielten Ergebnisse sind in Kapitel 5 zusammengefasst und zeigen die sehr hohe Zuverlässigkeit des Programmsystems MCMATH. Die abbrandabhängige Bestimmung der Reaktivität zeigt bei MCMATH auch am Ende des Abbrands noch eine zufriedenstellende Genauigkeit von etwa 1%. Hinsichtlich der abbrandabhängigen Brennstoffzusammensetzung wird mit MCMATH eine sehr hohe Genauigkeit im Vergleich zu anderen Programmsystemen erzielt. Für die wichtigsten Nuklide (Plutonium und wesentliche Spaltprodukte oder brennbare Neutronengifte) liegen die am Ende des Abbrands zu erwartenden Fehler im Bereich von maximal 3–5%. Bei der Bestimmung des Brennstoff-Temperaturkoeffizienten (FTC) können aufgrund der für MCNP vorliegenden Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken nur ausgewählte Temperaturdifferenzen untersucht werden. Im Rahmen dieser Beschränkung werden jedoch im Vergleich zu anderen Rechensystemen gute Ergebnisse mit Fehlern in der Größenordnung von 10% erzielt. Bei der Bestimmung des Moderator-dichte-Koeffizienten (MVC) spielen bei geringer Moderation (aufgrund geringer Moderator-dichte) die Wirkungsquerschnitte bei hohen Neutronenenergien eine besondere Rolle. Unsicherheiten in der Datenbasis einiger Nuklide führen hier zu etwas größeren Differenzen in den berechneten Werten dieses Reaktivitätskoeffizienten in Abhängigkeit von den in anderen Programmsystemen verwendeten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken. Daher liegen die Unsicherheiten in der Größenordnung von mehreren 10%. Die Berechnung der Bor-Wirksamkeit (BWC) zeigt wiederum eine hervorragende Übereinstimmung mit anderen Programmsystemen bei Abweichungen

von nur 2–3%.

Da die Eigenschaften von abgebrannten IMF und MOX-Brennstoff wesentlich vom erreichten Abbrand abhängen, wird in Kapitel 6 eine Methode zur Bestimmung des reaktivitätsbedingten maximalen Abbrands auf der Basis von Zell-Abbrandrechnungen vorgestellt. Diese Methode wird im Rahmen dieser Arbeit in *Mathematica* umgesetzt, was die Möglichkeit für eine systematische Untersuchung einer großen Anzahl einzelner Brennstoffe in Abhängigkeit von Parametern wie der anfänglichen Plutoniumkonzentration oder der Konzentration von brennbaren Neutronengiften eröffnet.

Mit den damit zur Verfügung stehenden Methoden werden zunächst Berechnungen für MOX-Brennstoffe mit verschiedenen Anfangskonzentrationen von RPu und WPu durchgeführt. Daraus wird eine Beziehung für den maximal erreichbaren Entladeabbrand in Abhängigkeit von der anfänglichen Plutoniumkonzentration bestimmt. Des weiteren werden ebenfalls für unterschiedliche Konzentrationen von RPu (0,4–1,0 g/cm³) und WPu (0,35–1,0 g/cm³) IMF auf der Basis der (Y,Zr)O₂-Brennstoffmatrix untersucht. In Kapitel 7 sind die entsprechenden Ergebnisse dargestellt. Es werden hier Referenzbrennstoffe definiert, die jeweils einen vorgegebenen Zielabbrand (300 bzw. 450 kWd/cm³ entsprechend 33,3 bzw. 50 MWd/kg(HM) in MOX) erreichen können. Für diese Referenzbrennstoffe zeigt sich als ein wesentlicher Unterschied zwischen IMF und MOX-Brennstoff die deutlich höhere mittlere Anfangsreaktivität der IMF bei gleichem erreichbarem Abbrand.

Daraus leitet sich die Frage nach der Reaktivitätskontrolle bei IMF ab. Diese wird in Kapitel 8 systematisch untersucht. Für die zuvor bestimmten Referenzbrennstoffe wird dazu der abbrandabhängige BWC bestimmt. Während dieser für MOX-Brennstoff nur eine verhältnismäßig schwache Abbrandabhängigkeit aufweist, ändert sich bei IMF durch die sehr starke Veränderung der Plutoniumkonzentration der BWC deutlich stärker. Es wird dann der Bor-Bedarf zur Kompensation der mittleren Anfangsreaktivitäten abgeschätzt. Dabei zeigt sich, dass gegenüber den Werten von 1100–1200 ppm bei konventionellen Uran-Brennstoffen bereits bei MOX-Brennstoffen ein mit 1500–1800 ppm leicht erhöhter Bor-Bedarf notwendig ist. Für IMF ergeben sich jedoch mit einem Bor-Bedarf von 3500–4500 ppm extrem hohe Werte, die in existierenden LWR nicht mehr realisierbar sind.

Die Problematik der Reaktivitätskontrolle in IMF kann durch die Nutzung brennbarer Neutronengifte (BP) gelöst werden. In Kapitel 9 werden Bor, Europium, Gadolinium und Erbium als mögliche BP untersucht. Für jedes dieser BP wird eine geeignete Anfangskonzentration bestimmt und es werden damit Abbrandrechnungen für IMF mit RPu und WPu durchgeführt. Dabei werden die selben Plutoniumkonzentrationen untersucht wie bei IMF ohne BP. Da sich im weiteren Verlauf besonders Gadolinium und Erbium als mögliche günstige BP erweisen, werden für diese beiden BP darüber hinaus jeweils vier verschiedene Anfangskonzentrationen festgelegt. Für die sich in Kombination mit allen Pu-Konzentrationen daraus ergebenden RPu- und WPu-IMF werden erneut Abbrandrechnungen durchgeführt. Dies erlaubt quantitative Aussagen zur Auswirkung der BP-Konzentration auf den erreichbaren Abbrand. Für alle Brennstoff-Kombinationen werden, wie bei den IMF ohne BP, Referenzbrennstoffe für einen vorgegebenen Zielabbrand identifiziert und für diese der abbrandabhängige BWC bestimmt. Für alle BP werden Referenzbrennstoffe identifiziert, die einen maximalen Bor-Bedarf von weniger als 2000 ppm

aufweisen. Hinsichtlich der Möglichkeit einer Reaktivitätskontrolle sind damit geeignete Referenzbrennstoffe definiert.

Abschließend werden dann in Kapitel 10 die anfänglich definierten Indikatoren zur Bewertung der Brennstoffe aus sicherheitstechnischer Sicht und hinsichtlich der nuklearen Nichtverbreitung für alle Referenzbrennstoffe vergleichend analysiert. Für den FTC ergeben sich bei IMF mit Werten von -1 bis -2 pcm/K deutlich weniger negative Werte als bei MOX- oder Uran-Brennstoffen, wo Werte von -2 bis -4 pcm/K erreicht werden. Hier erweist sich die Verwendung von Erbium als BP als günstig, da es aufgrund ausgeprägter Resonanzen in den Wirkungsquerschnitten einen deutlichen negativen Beitrag zum FTC liefert. Auch beim MVC weisen die IMF zum Teil erheblich weniger negative Werte auf als MOX- oder Uran-Brennstoff, wobei sich für die IMF eine sehr starke Abbrandabhängigkeit zeigt. Auch hinsichtlich des MVC erweist sich Erbium als das am besten geeignete BP. Demgegenüber sorgen die hohen thermischen Wirkungsquerschnitte der anderen betrachteten BP für zum Teil beträchtliche positive Beiträge zum MVC. Insbesondere für die IMF mit Gadolinium ergeben sich beim frischen Brennstoff deutlich positive Werte des MVC. Damit stellen IMF mit Erbium als BP die attraktivste Brennstoff-Kombination dar.

Die mit IMF erreichbare Plutoniumreduktion ist im Vergleich mit MOX-Brennstoff sehr hoch. Während bei den untersuchten MOX-Brennstoffen die Plutoniummenge bei RPu um etwa 30% und bei WPu um 35% reduziert werden kann, ergibt sich bei IMF ohne BP eine Reduktion von 77% bzw. 89%. Bei den eher realistischen IMF mit Erbium als BP ist immer noch eine Reduktion um 70% bei RPu bzw. 76% bei WPu denkbar. Zusätzlich zum deutlich stärkeren Abbau des Plutoniums und den entsprechend geringeren verbleibenden Plutoniumkonzentrationen im abgebrannten Brennstoff verändert sich auch die Isotopenzusammensetzung des Plutoniums sehr stark. Ausgehend von RPu ergibt sich beim MOX-Referenzbrennstoff für das verbleibende Plutonium eine um einen Faktor 1,3 erhöhte Wärmerate und eine um einen Faktor 1,53 erhöhte Neutronenrate. Beim Referenzbrennstoff für IMF mit Erbium ist dagegen die Wärmerate um den Faktor 2,15, die Neutronenrate um den Faktor 2,85 erhöht. Für Brennstoffe auf der Basis von WPu entspricht beim MOX-Referenzbrennstoff das verbleibende Plutonium in seiner Zusammensetzung etwa derjenigen von RPu. Auch beim entsprechenden WPu-IMF mit Erbium ist die Wärmerate des verbleibenden Plutoniums vergleichbar mit derjenigen von RPu, die Neutronenrate ist jedoch etwa doppelt so hoch wie bei RPu und liegt um einen Faktor 11,5 über derjenigen von WPu.

Insgesamt erweisen sich IMF als äußerst attraktive Alternative zur Verwendung von MOX-Brennstoff. Die Beherrschung der starken Reaktivitätsänderung bei IMF im Laufe des Abbrands kann durch die Verwendung geeigneter BP erreicht werden. Hinsichtlich der nuklearen Nichtverbreitung bieten IMF eindeutige Vorteile gegenüber MOX-Brennstoff. Jedoch sind auch in Bezug auf die Reaktivitätskoeffizienten FTC und MVC deutliche Unterschiede zwischen IMF und MOX-Brennstoff zu verzeichnen. Es bleibt an dieser Stelle weiteren Untersuchungen vorbehalten, die letztendliche sicherheitstechnische Bedeutung dieser Differenzen auszuarbeiten.

Anhang A

Abkürzungen und Formelzeichen

A.1 Verwendete Abkürzungen

BNFL British Nuclear Fuels, Ltd.

BOC Zyklusanfang (Beginning Of Cycle)

BOL Beginn des Abbrands (Beginning Of Life)

BP Brennbare Neutronengift (Burnable Poison)

BWC Bor-Wirksamkeit (Boron Worth Coefficient)

CEA Commissariat à l'Energie Atomique

COGEMA Compagnie Générale des Matières Nucléaires

DWR Druckwasserreaktor

ECN Energy research Centre of the Netherlands (Petten, Niederlande)

EOC Zyklusende (End Of Cycle)

EOL Ende des Abbrands (End Of Life)

FBR Schneller Brüter (Fast Breeder Reactor)

FPD Volllasttage (Full Power Days)

FTC Brennstoff-Temperaturkoeffizient (Fuel Temperature Coefficient)

HM Schwermetall (Heavy Metal)

IANUS Interdisziplinäre Arbeitsgruppe Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit

IMF Brennstoffe mit inerter Matrix (Inert Matrix Fuel)

JAERI Japan Atomic Energy Research Institute

INFCE International Nuclear Fuel Cycle Evaluation

JNC Japan Nuclear Fuel Cycle Development Institute

JNFL Japan Nuclear Fuel Ltd.

LWR Leichtwasserreaktor

MOX Uran-Plutonium-Mischoxid

MTC Moderator-Temperaturkoeffizient (Moderator Temperature Coefficient)

MVC Moderatordichte-Koeffizient (auch Dampfblasen-Koeffizient, Moderator Void Coefficient)

MWd/kg(HM) Typische Einheit des Abbrands (Megawatt-Tage pro Kilogramm Schwermetall)

NVV Nuklearer Nichtverbreitungsvertrag

OECD Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung (Organisation for Economic Co-Operation and Development)

pcm Einheit der Reaktivitätsänderung, entspricht 10^{-5} (percent milli rho)

POLIMI Politecnico di Milano (Italien)

PSI Paul Scherrer Institut (Schweiz)

Pu-fis Thermisch spaltbare Pu-Isotope (Pu-239 und Pu-241)

RPu Reaktorplutonium

SFS Spent Fuel Standard

SWR Siedewasserreaktor

SWU Anreicherungsarbeit (Separative Work Unit)

WPu Waffenplutonium

A.2 Häufig verwendete Formelzeichen

B Abbrand (Burnup)

c_B Kritische Bor-Konzentration im Kühlmittel

k_∞ Multiplikationsfaktor für ein unendlich ausgedehntes System

n Zahl der Zyklen, die ein Brennelement bestrahlt wird bzw. Anzahl der Chargen im Reaktorkern

N^i Konzentration des Nuklids i

$\phi(E, \vec{r})$ Energieabhängiger Neutronenfluss am Ort \vec{r}

ϕ_{tot} Effektiver Neutronenfluss

ρ_∞ Reaktivität für ein unendlich ausgedehntes System

ρ_0 Anfangsreaktivität eines unendlich ausgedehnten Systems mit Xe-Gleichgewichtskonzentration

ρ_{av} Mittlere Reaktivität eines unendlich ausgedehnten Systems aus n Chargen

ρ_B Reaktivitätsbeitrag des Bor im Kühlmittel

ρ_{eff} Reaktivität für ein System endlicher Ausdehnung

$\sigma_a^i(E)$ Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt für die Reaktion a des Nuklids i

$\sigma_a^i(\vec{r})$ Effektiver Wirkungsquerschnitt für die Reaktion a des Nuklids i am Ort \vec{r}

t_{cycle} Zykluslänge

Anhang B

Wirtschaftlichkeits- und Versorgungs-Aspekte

B.1 Wirtschaftlichkeitsaspekte

Aufgrund der im Vergleich zu Uran höheren Radioaktivität von Plutonium, seiner geringeren kritischen Masse und der Notwendigkeit, den Gefahren einer Abzweigung für Waffenzwecke vorzubeugen, ist der Umgang mit Plutonium im Vergleich zur Verwendung von niedrig angereichertem Uran mit beträchtlichem Aufwand verbunden, der sich auch in den Kosten für die Herstellung und Verwendung von MOX-Brennstoff im Vergleich zu Uran-Brennstoff erheblich bemerkbar macht. So könnte die höhere Radioaktivität des Plutoniums zu höheren Belastungen für die Beschäftigten führen, was durch eine weitestgehende Automatisierung ausgeglichen werden muss. Auch kann, um eine ungewollte Kritikalität ausschließen zu können, nur mit jeweils relativ geringen Mengen gearbeitet werden. Schließlich fallen erhebliche Aufwendungen für Sicherungsmaßnahmen (Safeguards) beim Umgang mit separiertem Plutonium an.

Die voraussichtlich tatsächlich anfallenden Kosten der Plutoniumnutzung für deutsche Betreiber werden in Mark Hibbs (1998) zitiert. Danach ergeben sich für die Wiederaufarbeitung inklusive der weiteren Bearbeitung der radioaktiven Abfälle Kosten von ca. 2000 DM/kg(HM). Die Herstellung von MOX-Brennstoff belief sich nach dieser Quelle (legt man keine Kosten für das verwendete Plutonium zugrunde) auf 5500 DM/kg(HM), ca. doppelt so viel wie die Gesamtkosten für die Herstellung von Uran-Brennstoff. Erst bei einer sechsfachen Verteuerung des Uranpreises würden die Kosten von Uran-Brennstoff vergleichbar zu denen von MOX-Brennstoff.¹ Bei diesen Berechnungen gingen allerdings nur die Kosten ein, die bei der Herstellung des Brennstoffs anfallen. Weitere zusätzliche Kosten entstehen bei der späteren Zwischen- bzw. Endlagerung aufgrund der höheren Wärmeleistung abgebrannter MOX-Brennelemente, die zu einem größeren Platzbedarf bei der Lagerung dieser Elemente führt. Von Küppers et al. (1999) werden auf der Basis

¹Allerdings wird auch darauf hingewiesen, dass französische Betreiber geringere Preise für die Wiederaufarbeitung und MOX-Fertigung zu zahlen haben.

von Kosten für die Zwischenlagerung abgebrannter Uran-Brennelemente die zusätzlichen Kosten für eine verlängerte Zwischenlagerung von abgebrannten MOX-Brennelementen abgeschätzt. Bei Kosten von etwa 120–160 DM/kg(HM) und einem um einen Faktor vier verlängerten Zwischenlagerzeitraum ergeben sich danach weitere Mehrkosten bei der Nutzung von MOX-Brennelementen in der Höhe von 360–480 DM/kg(HM).

Verschiedene Analysen haben gezeigt, dass die Verwendung von Plutonium als Mischoxidbrennstoff in der zivilen Kernenergienutzung unter den heute gegebenen Rahmenbedingungen nicht wirtschaftlich ist. Die Verwendung von Uran-Brennstoff allein ist deutlich kostengünstiger.

In einer Studie der Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung (OECD/NEA, 1994) wurden die Kosten der direkten Endlagerung von Uran-Brennstoffen mit denjenigen einer Wiederaufarbeitung und Plutoniumnutzung unter Zugrundelegung der europäischen Situation verglichen. Danach werden die langfristigen Kosten für die direkte Endlagerung bei 140–670 Euro/kg(HM) liegen, für die Wiederaufarbeitung bei 630–1300 Euro/kg(HM). Die Studie kommt damit zu dem Schluss, dass die Kostenvorteile der direkten Endlagerung relativ gering sind und sich unter Einbeziehung der Sensitivitätsbereiche die Kostenschätzungen sogar überschneiden. Für die Fertigungskosten von MOX-Brennstoff werden in OECD/NEA (1994) US\$ 800–1400/kg(HM) angenommen, diese Kosten liegen gemäß dieser Studie um einen Faktor vier über denjenigen von Uran-Brennstoff.

Von Hensing und Schulz (1995) wurde die Methodik der Studie genauer untersucht, da die Autoren die relativ schwachen Unterschiede zwischen den Kosten der direkten Endlagerung gegenüber der Plutoniumnutzung in Frage stellen. Danach gehen bei der Berechnung der Kosten in OECD/NEA (1994) nicht die bisherigen und momentanen Betriebskosten existierender Anlagen, sondern die abgeschätzten Kosten für Wiederaufarbeitung und Brennelementfertigung in geplanten Neuanlagen ein, die ab dem Jahr 2000 in Betrieb gehen sollten. Damit reduzierten sich die für 1994 angenommenen Kosten für die Wiederaufarbeitung von etwa 2400 DM/kg(HM) auf 1080–1440 DM/kg(HM), die Kosten der MOX-Brennelementfertigung von 4000–5000 DM/kg(HM) auf 1600–2800 DM/kg(HM), wobei als Rechtfertigung eine Kostenreduktion bei verstärkter industrieller Nutzung genannt wird. Diese Prognose in die Zukunft wurde von Hensing und Schulz (1995) kritisch hinterfragt.

In Hensing und Schulz (1995) wurde daher auf Basis der damaligen Kosten ein Kostenvergleich für die deutsche Situation erstellt. Hier gingen auch die vertraglichen Bindungen der deutschen Energieversorgungsunternehmen zur Wiederaufarbeitung und MOX-Fertigung ein. Es wird zwischen den bei der Brennelementherstellung und bei der Brennstoffentsorgung anfallenden Kosten unterschieden. Die Studie kommt zu dem Schluss, dass die Kosten für auf Wiederaufarbeitung und Plutoniumnutzung beruhende Brennstoffkonzepte beträchtlich über den Kosten bei einer direkten Endlagerung liegen. Im Falle der direkten Endlagerung ergibt sich ein Kostenvorteil gegenüber allen Varianten der Wiederaufarbeitung und Plutoniumnutzung von 18–50% bezogen auf die für die Entsorgung anfallenden

Kosten.² Insbesondere die Aussage in OECD/NEA (1994), dass die Kostenunterschiede eher gering ausfallen, können die Autoren nicht bestätigen.

Auf der Basis eines von Chow und Solomon (1993) entwickelten Modells wird von Chow (1996) abgeschätzt, bei welchem Preis für Natururan die Nutzung von Plutonium in Leichtwasserreaktoren wirtschaftlich werden könnte und wann dieser Zeitpunkt, ausgehend von Prognosen über das weitere Wachstum der zivilen Kernenergienutzung und der zur Verfügung stehenden Uranvorräte, erreicht sein wird. Dabei wurden verschiedene Szenarien unterschieden, die sich u. a. in den zugrundegelegten Kosten für die Wiederaufarbeitung und die Urananreicherung sowie der Diskontrate unterscheiden, wobei wesentliche Kostenangaben aus OECD/NEA (1994) verwendet wurden.

Die Autoren kommen zu dem Schluss, dass die Plutoniumnutzung in Leichtwasserreaktoren im günstigsten Fall ab einem Uranpreis von US\$ 97/kg U_3O_8 ökonomisch sinnvoll würde.³ Dieser Preis würde im günstigsten (aber unwahrscheinlichen) Szenario frühestens im Jahr 2014 erreicht. Für ein zweites Szenario mit Annahmen, welche für die Plutoniumnutzung ungünstiger sind, ergibt sich ein Uranpreis von US\$ 353/kg U_3O_8 , welcher frühestens im Jahr 2052 erreicht würde.⁴ Für den Fall des günstigsten Szenarios berechnet der Autor außerdem die Folgekosten, falls eine Nutzung von Plutonium in Leichtwasserreaktoren aufgrund von Überlegungen der Nichtweiterverbreitung von Kernwaffen bis 2034 (d. h. 20 Jahre über den Zeitpunkt hinaus, ab dem frühestens die Plutoniumnutzung ökonomische Vorteile bieten würde) ausgesetzt werden würde. Es ergibt sich, dass für diesen Fall die gesamten Stromgestehungskosten für den Zeitraum von 2014–2034 um ca. 2% höher liegen würden als im Falle eines sofortigen massiven Ausbaus der Plutoniumnutzung. Also ergibt es sich, dass selbst in diesem ungünstigsten Szenario keine relevanten gesellschaftlichen Kosten durch einen Verzicht auf die Plutoniumnutzung zu gewärtigen wären. Diese Zahlen entsprechen auch den Ergebnissen einer vergleichbaren aktuelleren Studie (Bunn et al., 2003).

In Giraud und de Lavergne (1997) werden demgegenüber Ergebnisse einer Studie des französischen Wiederaufarbeiters und MOX-Herstellers COGEMA von 1996 dargestellt. Unter Verwendung eines ähnlichen ökonomischen Modells wie von Hensing und Schulz (1995) verwendet kommt diese Studie unter Zugrundelegung anderer Randbedingungen zu dem Ergebnis, dass sich bei Wiederaufarbeitung und MOX-Herstellung Stromgestehungskosten von 1,46 Pf/kWh (0,75 Eurocent/kWh) ergeben würden. Im Vergleich lägen die Stromgestehungskosten bei einer Strategie der direkten Endlagerung bei 1,51 Pf/kWh (0,77 Eurocent/kWh).⁵

²So werden hier als Kosten für die direkte Endlagerung 0,718 Pf/kWh berechnet, für verschiedene Szenarien der Plutoniumnutzung ergeben sich dagegen Kosten von 0,844–1,075 Pf/kWh

³Im Jahr 2001 betrug der Natururanpreis in der Europäischen Union US\$ 15,4–21/kg U_3O_8 . Der mittlere Preis von Uran im Brennstoff betrug 38,25 Euro/kgU in U_3O_8 (Euratom Supply Agency (ESA), 2001).

⁴Die beiden Referenzfälle unterscheiden sich in den zugrundegelegten Kosten für die Urananreicherung, die Wiederaufarbeitung und die Verarbeitung von Plutonium zu MOX-Brennstoff.

⁵Diese Studie setzte als Randbedingung das Erreichen einer Reihe von Optimierungen des Brennstoffkreislaufs voraus, spezifisch u. a. eine Reduzierung anfallender Abfallmengen bei der Wiederaufarbeitung, eine Handhabung des wiedergewonnenen Urans und Plutoniums ohne Mehrkosten und eine tendenzielle

Für die französische Situation wurde eine Studie für den französischen Premierminister erstellt (Charpin et al., 2000). Hierin wurde ein hypothetisches Szenario, in dem angenommen wird, dass in Frankreich niemals wiederaufgearbeitet worden wäre, mit unterschiedlichen Szenarien der weiteren Nutzung der momentan existierenden Anlagen zur Wiederaufarbeitung und MOX-Brennelementfertigung sowie des Einsatzes von MOX-Brennstoff verglichen.⁶ In allen Szenarien wird eine konstante Gesamtstrommenge von 20.238 TWh in einen Zeitraum von 45 Jahren erzeugt.⁷ Aufgrund des Modells ergibt sich, dass sich die insgesamt angefallenen Kosten für den Fall der Kernenergienutzung ohne Wiederaufarbeitung auf 2779 Milliarden Francs belaufen, während diese Kosten für die Szenarien mit Wiederaufarbeitung und Plutoniumnutzung zwischen 2904 und 2943 Milliarden Francs liegen. Für alle Szenarien, die auf einer Wiederaufarbeitung und anschließenden MOX-Nutzung beruhen, ergeben sich somit für die mittleren Stromgestehungskosten pro Kilowattstunde mindestens fünf Prozent höhere Kosten als für das Szenario ohne Wiederaufarbeitung.

Fazit

Insgesamt kann damit festgehalten werden, dass aus heutiger Sicht eine Nutzung von Plutonium in der Form von Mischoxidbrennstoff in existierenden Leichtwasserreaktoren nicht wirtschaftlich ist. Erst ein deutlicher Anstieg der Uran-Brennstoffpreise, die auch unter ungünstigsten Umständen frühestens in einer Dekade, voraussichtlich jedoch nicht vor der Mitte dieses Jahrhunderts zu erwarten wären, oder massive Einsparungen bei der Wiederaufarbeitung und MOX-Fertigung könnte an dieser Ausgangsbedingung etwas ändern.

B.2 Plutoniumnutzung und Uranbedarf

Einen weiteren prinzipiell relevanten Aspekt stellt die durch die Nutzung von Plutonium mögliche Einsparung an Uran als Brennstoff dar. Hierzu gibt Tabelle B.1 einen Überblick über die in der Europäischen Union in den letzten Jahren als MOX-Brennstoff eingesetzte Plutoniummenge (Euratom Supply Agency (ESA), 2003). Hierbei wurde auch die mit diesem Plutonium Einsatz verbundene Einsparung an Uran-Brennstoff bestimmt, wobei angenommen wurde, dass eine Tonne Plutonium einer Einsparung von 120 t Natururan bzw. 80 tSWU entspricht.

Im Vergleich zu der mit MOX-Brennstoffen erzielten Uraneinsparung ist in Tabelle B.2 der jährliche Bedarf an angereichertem Brennstoff (LEU) über den selben Zeitraum zusammengefasst. Es wird an diesen Zahlen deutlich, dass die bisherige Nutzung von Plutonium in einer Größenordnung von 10 t pro Jahr einer Einsparung an Uran bzw. Anreicherungsbedarf von fünf bis sechs Prozent entspricht. Auch bei einer Steigerung des bisherigen

Gleichpreisigkeit von MOX- und Uran-Brennelementen.

⁶Dabei wird in verschiedenen Szenarien auch eine unterschiedliche Anzahl von Reaktoren für den MOX-Einsatz zugrunde gelegt.

⁷Dies entspricht einer jährlichen Produktion von 450 TWh. Im Jahr 2001 wurden in Frankreich 400 TWh elektrischer Energie erzeugt.

Jahr	Plutonium [t]	U_{nat} [tU]	Anreicherungs- äquivalent [tSWU]
1996	4,05	490	320
1997	5,77	690	460
1998	9,21	1110	740
1999	7,23	870	580
2000	9,13	1100	730
2001	9,07	1090	725
2002	9,89	1190	790
2003	12,12	1450	970
Total	66,47	7990	5315

Tabelle B.1: In der Europäischen Union in der Form von MOX-Brennstoff eingesetztes Plutonium sowie die damit verbundene Einsparung von Natururan (U_{nat}) und des zur Herstellung einer gleichen Menge Uran-Brennstoffs benötigten Anreicherungsbedarfs gemäß Euratom Supply Agency (ESA) (2004, S. 31).

Umsatzes um einen Faktor zwei ist damit der Beitrag von Plutonium zur Energieversorgung noch nicht beträchtlich. Die gesamte heute in Europa gelagerte Menge an abgetrenntem Plutonium könnte demnach etwa die innerhalb der EU in einem Jahr benötigte Brennstoffmenge ersetzen.

Jahr	LEU [tU]	U_{nat} [tU]	Anreicherungs- äquivalent [tSWU]
1996	2920	18.400	11.100
1997	2900	18.200	11.000
1998	2830	18.400	10.400
1999	2860	19.400	10.800
2000	2500	17.400	9800
2001	2800	20.300	11.100
2002	2900	20.900	11.600
2003	2800	20.700	11.500
Total	22.510	153.700	87.300

Tabelle B.2: In der Europäischen Union verbrauchter Uran-Brennstoff sowie der damit verbundene Bedarf an Natururan (U_{nat}) und der Anreicherungsbedarf gemäß Euratom Supply Agency (ESA) (2004, S. 72).

Fazit

Die Verwendung von separiertem Plutonium trägt nur in einem relativ geringen Maße zur gesamten Brennstoffversorgung bei. Ein Einfluss von uranfreien Brennstoffen auf diese

Zahlen kann sich wesentlich daraus ergeben, dass aufgrund eines Verzichts auf die Plutoniumneuproduktion aus Uran für einen vorgegebenen Abbrand eine etwas größere Menge Plutonium aufgewendet werden muss. Daher wird, bezogen auf eine gegebene Menge an umgesetztem Plutonium, der Beitrag zur Brennstoffversorgung bei uranfreien Brennstoffen etwas geringer sein als bei MOX-Brennstoffen.

Anhang C

Zur Waffenverwendbarkeit verschiedener nuklearer Materialien

Die Diskussion um die Waffentauglichkeit von Plutonium aus Leistungsreaktoren wird seit mehreren Jahrzehnten geführt. So wird die Verwendbarkeit von „Reaktorplutonium“ in Kernwaffen immer wieder in Frage gestellt (Mark Hibbs, 1997). Demgegenüber wird von offiziellen Stellen in den USA bereits seit den 70er Jahren auf die prinzipielle Waffentauglichkeit auch von „Reaktorplutonium“ hingewiesen. So wurde kürzlich vom U.S.-Energieministerium erneut die Frage der Waffentauglichkeit eindeutig positiv beantwortet (U.S. Department of Energy, 1997). Dies wird von U.S.-amerikanischen Kernwaffenentwicklern bestätigt (Mark, 1993). Auch theoretische Überlegungen von Physikern, welche nicht aus dem Bereich der Kernwaffenentwicklung stammen, die anlässlich der Diskussion um die zivile Nutzung von Plutonium in Deutschland bereits zu Beginn der 80er Jahre durchgeführt wurden, lassen keine Gründe erkennen, die gegen eine prinzipielle Eignung von „Reaktorplutonium“ sprechen (Kankeleit et al., 1989). Wesentliche Überlegungen hierzu sollen an dieser Stelle kurz zusammengefasst werden.

Die Frage der Waffentauglichkeit von Plutonium, das aus zivilen Kernreaktoren stammt, ist wesentlich für die Einschätzung der von solchen Beständen ausgehenden Proliferationsgefahren und der spezifischen Unterschiede zu Beständen von „Waffenplutonium“. Wie bereits geschildert unterscheidet sich „Reaktorplutonium“ von „Waffenplutonium“ durch die unterschiedliche Isotopenzusammensetzung (siehe Tabelle 2.1). Diese kommt dadurch zustande, dass in einem Reaktor aus U-238 zunächst Pu-239 gebildet wird, aus dem dann weitere Plutoniumisotope durch Neutroneneinfang entstehen.¹ Da die verschiedenen Plutoniumisotope unterschiedliche physikalische Eigenschaften (z. B. Halbwertszeiten oder die Rate der Spontanspaltungen) aufweisen, haben unterschiedliche Isotopenzusammensetzungen von Plutonium auch andere Eigenschaften bzgl. ihrer Verwendbarkeit in Waffen. Hieraus lassen sich in drei Bereichen Unterschiede zwischen „Waffen“- und „Reaktorplutonium“ ableiten, deren Bedeutung für die Waffentauglichkeit nun kurz diskutiert werden soll.

¹Ein relevanter Anteil des Plutoniumisotops Pu-238 entsteht allerdings auch durch mehrfachen Neutroneneinfang und anschließende Zerfälle aus U-235.

Kritische Masse: Die verschiedenen Plutoniumisotope weisen unterschiedliche Wahrscheinlichkeiten dafür auf, nach dem Einfang eines Neutrons auch tatsächlich gespalten zu werden. Diese unterschiedlichen Wahrscheinlichkeiten sind relevant für die Beantwortung der Frage, ob eine kritische Masse existiert. Eine kritische Masse ist diejenige Materialmenge, die mindestens vorliegen muss, damit eine explosive Kettenreaktion stattfinden kann.²

Während bei Uran das spaltbare Isotop U-235 einen Mindestanteil von ca. 5% aufweisen muss, damit eine kritische Masse existiert,³ gibt es für alle Plutoniumzusammensetzungen eine kritische Masse. Darüberhinaus ist bei Uran die Größe der kritischen Masse entscheidend von der Isotopenzusammensetzung abhängig,⁴ während sie bei unterschiedlichen Plutoniumzusammensetzungen praktisch konstant in der Größenordnung von etwa 10 kg liegt.

Die unterschiedliche Isotopenzusammensetzung beeinträchtigt also in dieser Hinsicht nicht die prinzipielle Waffentauglichkeit von „Reaktorplutonium“. Allerdings ist bei „Reaktorplutonium“ die maximal zu erwartende Energieausbeute (Yield) bei gleicher Masse im Vergleich zu „Waffenplutonium“ durch die etwas schlechteren Reaktionsverhältnisse reduziert.⁵

Neutronenproduktion und Frühzündungswahrscheinlichkeit: Geradzahlige Plutoniumisotope wie Pu-238 und Pu-240 haben eine gewisse Wahrscheinlichkeit zur spontanen Spaltung, bei der Neutronen frei werden. Die Zahl der pro Sekunde entstehenden Neutronen pro Plutoniummasse ist für die geradzahligen Plutoniumisotope ca. um einen Faktor 100.000 höher als bei Pu-239. Sie liegt für Pu-238 bei $2,6 \times 10^6$ n/(s·kg), für Pu-240 bei $0,91 \times 10^6$ n/(s·kg). Daher erzeugen bereits kleine Anteile geradzahliger Isotope eine relevante Menge an Neutronen.

In einer Kernwaffe muss das vorhandene spaltbare Material zunächst in einer nicht kritischen Anordnung vorliegen. Durch die Explosion konventioneller Sprengstoffe wird dann das spaltbare Material komprimiert und dadurch in eine überkritische Anordnung überführt, in der eine explosiv ablaufende Kettenreaktion möglich wird.

²Dabei ist diese Mindestmasse natürlich von verschiedenen Faktoren wie Form, Dichte, chemischen Verunreinigungen u. a. abhängig. Im allgemeinen gibt man als kritische Masse diejenige Masse an, bei der eine Kugel aus reinem Metall kritisch wird. Die benötigte Masse kann durch die Verwendung eines Neutronenreflektors, der das spaltbare Material umgibt, weiter reduziert werden.

³Diese Überlegung gilt nur für waffenartige Systeme, d. h. solche, welche mit schnellen Neutronen arbeiten. Werden die Neutronen durch die Verwendung eines sogenannten Moderators zunächst abgebremst, wie dies in typischen Kernreaktoren der Fall ist, so existiert auch für Uran mit einem niedrigen U-235 Anteil eine kritische Masse.

⁴Während sie bei hochangereichertem Uran, wie es in Waffen Verwendung findet, bei etwa 50 kg liegt, beträgt sie bei niedrig angereichertem Uran (< 20% U-235-Anteil) über 770 kg und steigt bis zu einem Anteil von ca. 5% auf unendlich an. Alle Angaben zu kritischen Massen beziehen sich hier auf unreflektierte kritische Massen, durch die Verwendung eines Neutronenreflektors werden die für eine Kernwaffe benötigten Mengen reduziert.

⁵So ist der zu erwartende maximale Yield bei gleicher Masse und Verwendung von „Waffenplutonium“ um ca. ein Faktor 5 größer als bei „Reaktorplutonium“. Eine Erhöhung der verwendeten Masse um ca. 15% erhöht allerdings auch den zu erwartenden maximalen Yield um ca. einen Faktor 1,5 (Kankeleit et al., 1989).

Zum Zeitpunkt der optimalen Kompression wird dann durch extern erzeugte Neutronen die Kettenreaktion gestartet. Neutronen aus der Spontanspaltung von Plutonium können nun dazu führen, dass diese Kettenreaktion bereits zu einem früheren Zeitpunkt einsetzt. Es kommt zu einer sogenannten Frühzündung. Dadurch kann der tatsächliche Yield im Vergleich zum maximal zu erwartenden beträchtlich reduziert werden.

Die Wahrscheinlichkeit für eine Frühzündung hängt von der pro Zeiteinheit entstehenden Anzahl an Neutronen ab. Bereits durch den Anteil an geradzahligem Plutoniumisotopen, der auch in „Waffenplutonium“ vorhandenen ist (hier etwa 6% Pu-240), entsteht eine relevante Anzahl Neutronen. Für „Reaktorplutonium“ ist diese Zahl nochmals etwa um einen Faktor 6 höher. Eine geringe Wahrscheinlichkeit für eine Frühzündung besteht also immer, aber bei „Reaktorplutonium“ ist diese deutlich erhöht. Hierzu liegen keine detaillierten Angaben aus dem militärischen Bereich vor, jedoch haben theoretische Berechnungen von Physikern, die nicht innerhalb der Kernwaffenforschung tätig sind, ergeben, dass ein relevanter Mindest-Yield in der Größenordnung von 1 kt TNT (also der Energie, die bei der Explosion von 1000 Tonnen des Sprengstoffes TNT freigesetzt wird) auch unter ungünstigsten Voraussetzungen nicht unterschritten wird (Kankeleit et al., 1989).⁶

Die bei „Reaktorplutonium“ im Vergleich zu „Waffenplutonium“ höhere Neutronenproduktion führt also zunächst zu der Einschätzung, dass „Reaktorplutonium“ deutlich schlechter für die Verwendung in Kernwaffen geeignet ist. Allerdings wird auch durch diesen Effekt die prinzipielle Nutzbarkeit von „Reaktorplutonium“ nicht in Frage gestellt. Durch Verbesserungen der Waffentechnik (wie z. B. die Erhöhung der Kompressionsgeschwindigkeit bei der Zündung der Waffe) kann außerdem versucht werden, diesen Effekt möglichst auszugleichen. Fortgeschrittene Kernwaffenstaaten wären daher in der Lage, aus „Reaktorplutonium“ Kernwaffen mit der selben Zuverlässigkeit sowie vergleichbarem Gewicht und Abmessungen herzustellen wie aus „Waffenplutonium“ (U.S. Department of Energy, 1997).

Wärmeentwicklung: Bei den verschiedenen radioaktiven Zerfällen der einzelnen Plutoniumisotope wird Energie freigesetzt, die zu einem großen Teil zu einer Aufheizung des Materials führt. Insbesondere gilt dies für das Isotop Pu-238 mit einer Wärmeleistung von 560 Watt/kg. Auch bei „Waffenplutonium“ werden bei einem Sprengkopf, der etwa 4–5 kg Plutonium enthält, ca. 10 Watt erzeugt, die durch geeignete Mechanismen abgeführt werden müssen. Für „Reaktorplutonium“ erhöht sich diese Wärmerate auf etwa 80 Watt. Methoden für die Abführung dieser Wärmemengen existieren jedoch und stellen nach offiziellen Aussagen der USA keine Schwierigkeiten für die Konstruktion einer Kernwaffe dar. Erst ab einem Gehalt von über 80% Pu-238 wird davon ausgegangen, dass die erzeugte Wärmemenge eine Nutzung für Kernwaffen definitiv ausschließen würde (U.S. Department of Energy, 1997). Auch aus Unterschieden in der Wärmeerzeugung kann daher die prinzipielle Waffentauglichkeit von „Reaktorplutonium“ nicht in Frage gestellt werden.

⁶Eine Yield von 1 kt TNT würde immer noch einen Zerstörungsradius von etwa einem Drittel der Hiroshima-Bombe aufweisen, die eine Sprengkraft von ca. 20 kt TNT aufwies (U.S. Department of Energy, 1997).

Insgesamt kann daher festgehalten werden, dass praktisch jegliche Form von Plutonium für die Herstellung von Kernwaffen verwendet werden kann. Die spezifischen physikalischen Unterschiede zwischen „Reaktorplutonium“ und „Waffenplutonium“ bedingen zwar eine schlechtere Eignung von „Reaktorplutonium“, schließen eine Verwendbarkeit jedoch nicht aus. Ein stärker quantitative Analyse folgt weiter unten.

Nicht diskutiert wurde hier, welche Auswirkung eine Veränderung der Isotopenzusammensetzung von Plutonium-Beständen hätte, welche die Kernwaffenstaaten für ihre Arsenale zur Verfügung haben. Die Kernwaffenstaaten verfügen bereits über entwickelte und getestete Kernwaffendesigns, welche für eine gegebene Isotopenzusammensetzung entwickelt wurden. Eine Änderung dieser Zusammensetzung könnte hier dazu führen, dass bestehende Designs nicht mehr oder nur nach aufwendigen Modifikationen verwendet werden könnten. Eine Diskussion dieser Problematik ist allerdings aufgrund der fehlenden Informationen in diesem Bereich praktisch nicht möglich und für die hier interessierende Fragestellung nach der Bedeutung von Plutonium-Beständen auch nicht relevant.

Es wurde hier ebenfalls nicht auf die Tatsache eingegangen, dass „Reaktorplutonium“ immer zu einem gewissen Teil mit Am-241 aus dem Zerfall von Pu-241 verunreinigt ist. Dieses Am-241 wiederum zerfällt unter Aussendung von hochenergetischer Gammastrahlung und stellt daher eine radiologische Gefahr bei der Verarbeitung des Plutoniums dar. Dies stellt jedoch auch nicht die prinzipielle Nutzbarkeit von „Reaktorplutonium“ in Frage, sondern erhöht lediglich die Schwierigkeiten beim Umgang⁷ mit solchem Plutonium.

In Tabelle C.1 sind zwei typische Isotopenzusammensetzungen angegeben, für „Reaktorplutonium“ (RPu) aus Leistungsreaktoren und für „Waffenplutonium“ (WPu), das speziell für Waffenzwecke produziert wurde. Die Angaben für RPu entsprechen etwa einer Mittelung über die Zusammensetzung der zur Zeit gelagerten Plutonium-Bestände, daher entfällt hier eine Angabe des Gehalts von Am-241 (OECD/NEA, 1995a); Angaben für WPu basieren auf einem Uran-Abbrand von ca. 0,3 MWd/kg(HM), entsprechend einer Standzeit von weniger als zwei Wochen, bei einem Alter nach Abtrennung von ca. 20 Jahren (Committee on International Security and Arms Control (CISAC), 1994). Nach der Abtrennung von Plutonium aus dem abgebrannten Brennstoff entsteht im separierten Plutonium neues Am-241 durch den β^- -Zerfall des Pu-241 (Halbwertszeit 14 Jahre).

Nur die ungeradzahligen Isotope sind entsprechend ihrer Spaltquerschnitte durch thermische Neutronen in entsprechenden Reaktoren spaltbar. Die mittlere Energie eines Neutrons aus der Spaltung beträgt etwa 1 MeV, in thermischen Reaktoren werden die Neutronen durch den Moderator auf thermische Energien (typisch 0,025 eV) abgebremst. Mit schnellen Neutronen, wie sie in einer Kernwaffe auftreten, sind alle Plutoniumisotope spaltbar. In Tabelle C.1 ist zur Veranschaulichung dieser Tatsache die Wahrscheinlichkeit für Spaltung bei Neutroneneinfang $p_{fis} = \frac{\sigma_{fis}}{\sigma_{fis} + \sigma_{\gamma}}$ jeweils für Wirkungsquerschnitte für Spaltung (σ_{fis}) und Neutroneneinfang (σ_{γ}) gemittelt über ein thermisches Neutronenspektrum (Maxwell-Spektrum um 0,0253 eV, entsprechend einer Temperatur von 20°C)

⁷Unter Umgang mit Plutonium soll hier jegliche Handhabung von Plutonium verstanden werden. Dies kann Transporte ebenso umfassen wie verschiedene Verarbeitungsschritte (chemischer Umwandlungen, mechanische Bearbeitung, etc.).

bzw. ein Spaltneutronenspektrum (mittlere Energie ca. 1 MeV) angegeben. Multipliziert man diese Wahrscheinlichkeit noch mit der Zahl der pro Spaltung freigesetzten Neutronen ν vermindert um eins, so erhält man die pro Absorption eines Neutrons im Brennstoff im Mittel hinzugewonnenen Neutronen ΔN , was ein Maß für den Anstieg (bzw. Abfall) der Neutronenpopulation in einem entsprechenden Material bei unendlicher Ausdehnung darstellt. Wegen der relativ kleinen räumlichen Ausdehnung einer kritischen Masse geht von den pro Spaltung freigesetzten Neutronen noch ein relevanter Anteil dadurch verloren, dass die Neutronen die Anordnung verlassen, ohne überhaupt eingefangen zu werden. Daher muss der Wert ΔN nicht nur positiv sein, sondern beträchtlich über Null liegen.

		Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Am-241	
	RPU	1,80	59,00	23,00	12,20	4,00		%
	WPU	0,01	93,82	5,80	0,13	0,02	0,22	%
Thermisch	σ_f	15,18	698,3	0,053	938,0	0,002279	2,711	barn
	σ_{γ}	458,0	274,2	263,6	326,1	16,82	532,0	barn
	p_{fis}	3,2	71,8	0,02	74,2	0,01	0,5	%
	ν	2,90	2,88	2,80	2,95		3,24	
	ΔN	>0,1	1,35	>0,1	1,45		>0,1	
Schnell	$\sigma_{s,f}$	1,994	1,8	1,357	1,648	1,127	1,378	barn
	$\sigma_{s,\gamma}$	0,099	0,053	0,093	0,118	0,088	0,230	barn
	p_{fis}	95,3	97,1	93,6	93,3	92,8	85,7	%
	ν	3,04	3,02	2,96	3,03		3,00	
	ΔN	1,94	1,96	1,83	1,89		1,71	
Halbwertszeit		87,7	24000	6550	14,4	380000	432,6	Jahre
Wärmerate		560	1,9	6,8	4,2	0,1	114	W/kg
Neutronenrate		2600	0,022	910	0,049	1700	1,2	n/(s·g)

Tabelle C.1: Verschiedene relevante kernphysikalische Daten. Wirkungsquerschnitte für thermische und schnelle Neutronen gemäß Korea Atomic Energy Research Institute (2004). Die Werte für ν wurden von Pearlstein (1999) übernommen. Angaben zu Halbwertszeiten, Wärmeraten und Neutronenproduktion stammen von Glaser (1998).

In Tabelle C.2 werden die kritischen Massen für Uran- und Plutoniumkugeln verschiedener Isotopenzusammensetzungen basierend auf Monte-Carlo Simulationsrechnungen angegeben. Dabei wird als Neutronenreflektor eine sphärische Schale aus natürlichem Uran einer Stärke von 10 cm angenommen (U-Dichte: 19,05 g/cm³, Pu-Dichte: 19,84 g/cm³). Es ergibt sich, dass die kritischen Massen für WPU und typisches RPU nur unwesentlich auseinander liegen.

Es ergeben sich gewisse Unterschiede bzgl. dynamischer Effekte bei der Kernwaffenexplosion und der Handhabbarkeit des spaltbaren Materials Plutonium. Die Handhabbarkeit für Waffenanwendungen hängt im Falle des Plutoniums im wesentlichen mit der Zerfallswärme einiger Isotope zusammen (vergl. Tabelle C.1). Pu-238 liefert mehrere hundert Watt pro Kilogramm. Am-241, das aus dem Zerfall des Pu-241 entsteht, kann ebenfalls einen

merklichen Beitrag zur Wärmeleistung des spaltbaren Materials liefern. Vorrichtungen zur Ableitung der Wärme müssten bei der Waffenkonstruktion ggf. vorgesehen werden.

Die Dynamik der Waffe kann durch den Neutronenhintergrund aufgrund von Spontanspaltung im spaltbaren Material beeinflusst werden (Frühzündungsproblem). Geradzahlige Pu-Isotope liefern den größten Beitrag, entsprechend ihres Anteils am Isotopengemisch allen voran Pu-240, gefolgt von Pu-242 und Pu-238 (vergl. Tabelle C.1). Ein Neutron aus Spontanspaltung kann zur Frühzündung der Waffe führen, indem die Kettenreaktion gestartet wird, bevor eine optimale Kompression des spaltbaren Materials durch den konventionellen Sprengstoff erfolgt ist. Die Wahrscheinlichkeit dafür steigt, je höher der Neutronenhintergrund ist. Die Folge kann eine Reduktion der Energieausbeute sein.

Diese Probleme treten bei Uran als Spaltstoff praktisch nicht auf, jedoch muss dann U-235 genügend hoch angereichert sein, damit eine praktikable Waffe konstruiert werden kann. Für typisches WPu liegt die Wärmerate bei etwa 15 W pro 6 kg, und es existiert ein Neutronenhintergrund, der durchaus relevant sein kann. Für typisches RPu ist der Neutronenhintergrund im Vergleich zu WPu 7-fach erhöht und die Wärmerate liegt bei ca. 80 W pro potentielltem Sprengkopf (von ca. 6 kg).

	Unreflektierte Kugel	Reflektierte Kugel			
Material	Kritische Masse	Kritische Masse	Masse inkl. Reflektor	Neutronen Rate [$\times 10^3$ n/(s·kg)]	Wärmerate [W/kg]
U-235: 95% U-238: 5%	52,22 kg	19,23 kg	341,3 kg	< 0,002	—
U-235: 20% U-238: 80%	770,45 kg	358,88 kg	1487,6 kg	< 0,02	—
WPu	10,51 kg	4,64 kg	210,8 kg	53	2,5
RPu	13,23 kg	5,81 kg	224,9 kg	324	13,3

Tabelle C.2: Kritische Massen, Neutronenhintergrund und Wärmeentwicklung für verschiedene Isotopenzusammensetzungen.

Simulationsrechnungen von Physikern, welche nicht aus dem Bereich der Kernwaffenentwicklung stammen, zeigen (Kankeleit et al., 1989), dass bereits bei der Verwendung von WPu eine gewisse Frühzündungswahrscheinlichkeit (im Prozentbereich) besteht, aber es gibt eine sehr hohe Wahrscheinlichkeit für eine maximale Energieausbeute (entsprechend 20 kt TNT bei 6 kg Pu)⁸. Für typisches RPu besteht eine hohe Wahrscheinlichkeit für Frühzündung, die zu einer Reduktion der Energieausbeute führt. Jedoch wird bei 6 kg Pu eine minimale Ausbeute entsprechend 1 kt TNT nicht unterschritten. Wird die Waffentechnik verbessert (Erhöhung der Implosionsgeschwindigkeit durch den konventionellen

⁸Dabei entspricht die Energieausbeute von 20 kt TNT hier einer Spaltung von ca. 15% des Plutoniums. Eine höhere Ausbeute ist aufgrund der angenommenen Waffentechnik in diesem Modell nicht erreichbar.

Sprengstoff von 2 km/s auf 4 km/s), so besteht eine sehr hohe Wahrscheinlichkeit für eine mittlere Energieausbeute entsprechend 3–4 kt TNT; sie ist gegenüber dem theoretischen Maximum von 20 kt zwar reduziert, aber doch bereits recht hoch. Eine weitere Steigerung der Sprengkraft könnte durch das sogenannte Tritium-Boosting erreicht werden. Indem 1–2 g Tritium-Deuterium-Gemisch in die Spaltstoff-Hohlkugel inkorporiert wird, kann durch die entstehenden Fusionsneutronen die Spaltausbeute durchaus um einen Faktor 5–10 gesteigert werden. So wäre bei Verwendung von RPu die Vergleichssprengkraft einer WPu-Bombe von 20 kt TNT erreichbar oder gar überschreitbar. Hierdurch würde das Problem der Frühzündung reduziert.

Für eine breitere Diskussion zur Waffenfähigkeit siehe DeVolpi (1979); Kankleit et al. (1989); Mark (1993); Committee on International Security and Arms Control (CISAC) (1994); Garwin (1994).

Anhang D

Zu den Einheiten des Abbrands

Üblicherweise wird der erreichte Abbrand B (Burnup) eines Brennstoff in Einheiten der freigesetzten Energie E bezogen auf die anfänglich im Brennstoff enthaltene Schwermetallmenge (heavy metal, kg(HM); d. h. bezogen auf Uran bzw. Uran und Plutonium), also in MWd/kg(HM) oder GWd/t(HM) angegeben. Dies ist für die klassischen Uran- bzw. MOX-Brennstoffe praktisch, da bei gleicher anfänglicher Brennstoffdichte diese Größe ein gutes Mass für die Brennstoffausnutzung unabhängig von der Anreicherung bzw. dem anfänglichen Plutoniumgehalt darstellt.

Für die Untersuchung von uranfreien Brennstoffen eignet sich diese Angabe nicht, da die anfängliche Schwermetallmenge hier nur durch das eingebrachte Plutonium gegeben ist. Beim Vergleich von Brennstoffen mit unterschiedlichem anfänglichen Plutoniumgehalt würde bei gleicher Leistungsdichte und Bestrahlungsdauer daher ein unterschiedlicher Abbrand resultieren, eine Vergleichbarkeit der Brennstoffe bei gleichem Abbrand wäre nicht gegeben. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit der Abbrand auf das Brennstoffvolumen bezogen, d. h. in Einheiten von freigesetzter Energie pro Brennstoffvolumen in kWd/cm³ angegeben. Wird die Bestrahlungsdauer in Voll-Last-Tagen (Full Power Days, FPD), die Leistungsdichte p entweder in W/g(HM) oder W/cm³ und die anfängliche Dichte des Schwermetalls ρ_{HM} in g(HM)/cm³ angegeben, so ergeben sich folgende Umrechnungen:

$$B/(MWd/kg(HM)) = 10^{-3} \cdot p/(W/g(HM)) \cdot t/(FPD),$$

$$B/(kWd/cm^3) = B/(MWd/kg(HM)) \cdot \rho_{HM}/(g(HM)/cm^3),$$

$$B/(kWd/cm^3) = 10^{-3} \cdot p/(W/cm^3) \cdot t/(FPD),$$

Speziell wurde für Uran- bzw. MOX-Brennstoffe im Rahmen dieser Arbeit eine anfängliche Schwermetалldichte ρ_{HM} von 9 g/cm³ und eine Leistungsdichte von 38,3 W/g(HM) (entsprechend 344,7 W/cm³) angenommen (OECD/NEA, 1995a). Ein Abbrand von 50 MWd/kg(HM) bzw. 450 kWd/cm³ entspricht dann einer Bestrahlungsdauer von 1305,48 FPD. Für die untersuchten uranfreien Brennstoffe wurde eine Leistungsdichte von 360 W/cm³ für die Berechnungen zugrundegelegt, bei 1250 FPD ist dann für diese Brennstoffe ein Abbrand von 450 kWd/cm³ erreicht.

Anhang E

Abschätzung der Neutronenverluste aufgrund von Leckage

Die folgende Diskussion beruht auf Driscoll et al. (1990). Eine grobe Abschätzung der Neutronenleckage kann danach durch die Abschätzung des Neutronenstroms an den Rändern des Reaktorkerns erfolgen. Es sind dabei zwei Anteile zu diskutieren, die axiale und die radiale Leckage.

Der axiale Neutronenverlust kann zunächst in guter Näherung durch die Betrachtung der Verhältnisse für eine eindimensionale Platte der Höhe H untersucht werden. Die Ortsverteilung der entstehenden Neutronen ist durch die Neutronen-Quellverteilung $S(\zeta)$ beschrieben. Die im Reaktorkern erzeugten Neutronen pro Zeit ergeben sich durch Integration über die (symmetrische) Verteilung der Neutronenquellen $S(\zeta)$. Der im Kern vorliegende Fluss ϕ am Ort x pro am Ort (ζ) gestartetem Neutron ist dann gegeben durch (Driscoll et al., 1990, S. 22):

$$\phi(x, \zeta) = \frac{M}{2D} \cdot \exp \left[-\frac{x - \zeta}{M} \right].$$

Dabei ist M die Migrationslänge der Neutronen und D der Diffusionskoeffizient. Für den durch Neutronen vom Ursprung ζ am Ort x erzeugten Neutronenstrom $J(x, \zeta)$ gilt folglich:

$$J(x, \zeta) = -D \cdot \frac{d}{dx} [\phi(x, \zeta)] = \frac{1}{2} \exp \left[-\frac{x - \zeta}{M} \right].$$

Der leakagebedingte axiale Reaktivitätsverlust, bestimmt sich aus dem Gesamtverlust der Neutronen durch den Strom am Ort $x = \pm H/2$. Der Reaktivitätsverlust $\Delta\rho_{L,ax}$ ergibt sich dann aus dem Verhältnis aus Neutronenverlust und Neutronenproduktion zu:

$$\Delta\rho_{L,ax} \approx \frac{2 \int_{-H/2}^{H/2} J\left(\frac{H}{2}, \zeta\right) \cdot S(\zeta) d\zeta}{\int_{-H/2}^{H/2} S(\zeta) d\zeta}.$$

Unter Annahme verschiedener Neutronen-Quellprofile lässt sich damit die axiale Leckage

abschätzen. So folgt für drei wesentliche typische Quellverteilungen unter Annahme von typischen Dimensionen für $M = 7,5$ cm und $H = 300$ cm:¹

- Flache Verteilung, $S(\zeta) = 1, 0$:
 $\Delta\rho_{L,ax} = \frac{M}{H} = 0,0250,$
- Cosinusverteilung, $S(\zeta) = \cos\left(\frac{\pi\zeta}{H}\right)$:
 $\Delta\rho_{L,ax} = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi M}{H}\right)^2 = 0,0031,$
- Flache Verteilung mit abfallenden Kanten, $S(\zeta) = 1 - \exp\left[-\frac{H/2-\zeta}{M}\right]$:
 $\Delta\rho_{L,ax} = \frac{1}{2} \left(\frac{M}{H}\right) = 0,0125.$

Während zu Beginn des Abbrands die Quellverteilung in einem typischen Reaktorkern eher durch eine Cosinusfunktion angenähert werden kann, gilt gegen Ende des Abbrands (dieser Zeitpunkt ist für die Bestimmung des maximal erreichbaren Abbrands wesentlich) eher der Wert für eine flache Verteilung mit abfallenden Kanten, d. h. $\Delta\rho_{L,ax} \approx 0,0125$.²

Die bisherige Herleitung für die axialen Verluste wurde für die Verhältnisse einer eindimensionalen Platte durchgeführt. Die radialen Verluste können unter der Annahme, dass der Radius des Reaktorkerns R groß gegen die Migrationslänge der Neutronen ist ($R \gg M$), für eine flache Neutronenquellverteilung mit abfallenden Kanten bestimmt werden (Driscoll et al., 1990, S. 23):

$$\Delta\rho_{L,rad} \approx \frac{2\pi R \cdot (M/2)}{\pi R^2} = \frac{M}{R}.$$

Damit folgt für typische Werte ($R = 150$ cm und $M = 7,5$ cm) ein Wert der radialen Leakage von $\Delta\rho_{L,rad}$ von 0,050. Da die radiale Leakage wesentlich durch die äußeren Brennelemente bestimmt ist, kann der Reaktivitätsverlust tatsächlich so hoch sein, wenn frische Brennelemente am Rand des Kerns geladen werden. Für „low-leakage“-Beladungen (abgebrannte Brennelemente werden am Rand des Kerns geladen) ist der radiale Verlust deutlich geringer als im Standardfall, eine Reduktion um den Faktor drei kann erreicht werden (Driscoll et al., 1990, S. 23,f.), d. h. für den radialen Reaktivitätsverlust ergibt sich ein Wert von etwa $\Delta\rho_{L,rad} \approx 0,017$.

Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten uranfreien Brennstoffe wird, wie oben begründet, bei vorgegebener Anfangszusammensetzung des Brennstoffs ein möglichst ho-

¹Hierbei kann die untere Integrationsgrenze wo sinnvoll durch 0 bzw. $-\infty$ ersetzt werden, da für den Beitrag zum Neutronenstrom bei $\pm H/2$ im wesentlichen Quellen im Abstand von wenigen M beitragen und $H \gg M$.

²An anderer Stelle wird auch der Bedarf des Neutronenabsorbers Bor zu Beginn des Abbrands durch die Bor-Wirksamkeit und die anfängliche Überschussreaktivität bestimmt. Dabei könnte ein größerer Neutronenverlust durch Leakage aufgrund der stärker inhomogenen Quellverteilung zu Beginn des Abbrands angenommen werden. Die Annahme eines einheitlichen (niedrigeren) Neutronenverlusts stellt hier eine konservative Annahme dar, da sie zu einem höheren Bor-Bedarf führt als bei größerem Neutronenverlust.

her Abbrand angestrebt. Im Folgenden wird daher davon ausgegangen, dass eine solche „low-leakage“-Beladung gewählt wird und auch möglich ist.³

Für den gesamten Reaktivitätsverlust durch Neutronenleckage ergibt sich damit für einen „Standardreaktor“ mit „low-leakage“-Beladung ein Wert für

$$\Delta\rho_L = \Delta\rho_{L,ax} + \Delta\rho_{L,rad} \approx 0,03. \quad (\text{E.1})$$

Dieser Wert wird im Rahmen dieser Arbeit als Standardwert für die Verluste durch Neutronenleckage verwendet.

³Bei einer „low-leakage“-Beladung kommt es aufgrund der zentralen Position der frischen Brennelemente zu einem stärkeren Power-peaking im Kern. Dies kann unter Umständen die Umsetzbarkeit einer „low-leakage“-Beladung beschränken.

Anhang F

Verfügbare Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken für MCNP

Die Grundlage für die Berechnung von neutronenphysikalischen Prozessen mittels MCNP stellen die Wirkungsquerschnitte für Neutronen (und ggf. weiterer Teilchen) dar. Die Wirkungsquerschnitte sind vom wechselwirkenden Nuklid und der Energie der Neutronen abhängig. Werte für die Wirkungsquerschnitte werden aus experimentellen Untersuchungen und theoretischen Betrachtungen ermittelt und in sogenannten evaluierten Kerndatenbibliotheken zusammengefasst (Cross Section Evaluation Working Group, 2001). Für die Verwendung mit reaktorphysikalischen Rechenprogrammen wie MCNP müssen diese evaluierten Kerndatenbibliotheken auf die konkrete Problemstellung und das verwendete Datenformat angepasst werden. Hierfür kann das Programm NJOY verwendet werden (MacFarlane und Muir, 1994). Die Erstellung von geeigneten Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken für alle relevanten Nuklide (hier ca. 200) unter Berücksichtigung der verschiedenen im Reaktor auftretenden Temperaturen (für Störungsrechnungen ist neben dem kalten und dem heißen Zustand möglichst mindestens ein weiterer zu berücksichtigen) sowie deren anschließende Validierung stellt einen beträchtlichen Arbeitsaufwand dar, so dass im Rahmen dieser Arbeit auf international erhältliche Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken zurückgegriffen wurde. Neben den mit der MCNP-Distribution erhältlichen Bibliotheken (Oak Ridge National Laboratory, 2001) sind seit einigen Jahren auch andere, z. T. sehr umfangreiche Distributionen von Bibliotheken für MCNP über die NEA Datenbank in Paris für Mitglieder von OECD-Staaten erhältlich (Oak Ridge National Laboratory, 2001; Briesmeister, 2000; Gil, 2001; Abdelrahman und Abdurrahman, 1999; Kosako et al., 2003).

F.1 Temperaturabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte

Bei niedrigen Energien der Neutronen ist die Relativbewegung der Kerne nicht mehr vernachlässigbar. Damit muss der energieabhängige Wirkungsquerschnitt an die Relativbewegung Neutron/Kern angepasst werden.

Zwei wesentliche Effekte erfordern dabei die Bereitstellung von speziell für bestimmte Temperaturen erstellten Bibliotheken. Insbesondere für schwere Kerne ist der Effekt der Dopplerverbreiterung von Resonanzen bei mittleren Energien zu berücksichtigen. Für leichte Kerne ist insbesondere der Effekt der chemischen Bindung auf das Streuverhalten zu berücksichtigen.

F.1.1 Doppler-Verbreiterung von Resonanzen

Der effektive energieabhängige Wirkungsquerschnitt soll unter der Annahme eines in Ruhe befindlichen Kerns die selbe Reaktionsrate ergeben, wie der tatsächliche energieabhängige Querschnitt $\bar{\sigma}$ für Kerne, die eine mittlere Geschwindigkeitsverteilung $P(\vec{v}_K, T)$ aufweisen. Damit muss gelten

$$\rho v_N \bar{\sigma}(v_N, T) = \int d\vec{v}_K \rho |\vec{v}_N - \vec{v}_K| \sigma(|\vec{v}_N - \vec{v}_K|) P(\vec{v}_K, T),$$

mit \vec{v}_N und \vec{v}_K den Geschwindigkeiten des Neutrons bzw. des Kerns, ρ der Dichte des streuenden Materials (MacFarlane und Muir, 1994).

Unter Annahme einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung für die Geschwindigkeiten der streuenden Kerne und einer isotropen Geschwindigkeitsverteilung folgt für $\bar{\sigma}$ nach MacFarlane und Muir (1994):

$$\bar{\sigma}(v_N, T) = \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}} \frac{1}{v_N^2} \int_0^\infty dv_R \sigma(v_R) v_R^2 \left(\exp(-\alpha(v_N - v_R)^2) - \exp(-\alpha(v_N + v_R)^2) \right),$$

wobei $\alpha = m_K/(2kT)$ mit der Kernmasse m_K und der Boltzmannkonstanten k sowie $v_r = |\vec{v}_N - \vec{v}_K|$ gilt. Die so bestimmten effektiven Querschnitte werden für MCNP in punktwisen Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken für eine bestimmte Temperatur abgelegt (s. u.). Der Effekt der Resonanzselbstabschirmung der Wirkungsquerschnitte, welcher bei vielen anderen Programmen bereits bei der Erstellung der Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken berücksichtigt werden muss, wird von MCNP durch die Verwendung von Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken mit kontinuierlicher Energie und der gleichzeitigen Bestimmung des effektiven Flusses und der effektiven Wirkungsquerschnitte in MCNP berücksichtigt.

F.1.2 Streumatrix

Insbesondere für leichte Kerne ist die Streuung von Neutronen auch stark von der Möglichkeit der Anregung von Molekül- oder Gitterschwingungen sowie von der thermischen Bewegung der Kerne abhängig. Einen wichtigen Beitrag bei der thermischen Streuung liefert dabei die inkohärente inelastische Streuung. Nach MacFarlane und Muir (1994) gilt hierfür

$$\sigma(E, E', \mu) = \frac{\sigma_b}{2kT} \sqrt{\frac{E'}{E}} \exp\left(-\frac{\beta}{2}\right) S(\alpha, \beta),$$

wobei E und E' die Energie des einfallenden bzw. gestreuten Neutrons, μ der Cosinus des Streuwinkels im Laborsystem und σ_b der integrale Streuquerschnitt des gebundenen Kerns für den Grenzfall kleiner Neutronenenergie bei $T = 0$ ist. $S(\alpha, \beta)$ ist die Streumatrix, welche vom dimensionslosen Impulsübertrag α

$$\alpha = \frac{E' + E - 2\mu\sqrt{EE'}}{AkT}$$

und dem dimensionslosen Energieübertrag β

$$\beta = \frac{E' - E}{kT},$$

mit dem Verhältnis der Masse des Streukerns zur Neutronenmasse A abhängt. Während für gasförmige, ungebundene Kerne die Streumatrix $S(\alpha, \beta)$ in MCNP über

$$S(\alpha, \beta) = \frac{1}{\sqrt{4\pi\alpha}} \exp\left(-\frac{\alpha^2 + \beta^2}{4\alpha}\right)$$

berechnet werden kann, sind die Werte von $S(\alpha, \beta)$ für andere Verbindungen tabelliert in Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken abgelegt. Für relevante Verbindungen existieren für MCNP hierfür zusätzliche Bibliotheken.¹

F.2 Vorliegende Bibliotheken

¹So sind insbesondere für leichtes und schweres Wasser, aber auch für Graphit oder Paraphin Bibliotheken vorhanden.

Tabelle F.1: MCNP Bibliotheken — Aktinide

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c)	450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c)	900 (^d)	920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)			
902300	Thorium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
902310	Thorium	Ja	35c																
902320	Thorium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
902330	Thorium	Ja	35c																
912310	Protactinium	Ja		60c	60c						63c		66c						
912330	Protactinium	Ja		50c	60c						63c		66c						
922320	Uran	Ja		60c	60c						63c		66c						
922330	Uran	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
922340	Uran	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
922350	Uran	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
922360	Uran	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
922370	Uran	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
922380	Uran	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
922390	Uran	Ja	35c																
922400	Uran	Ja	35c																
932350	Neptunium	Ja	35c																
932360	Neptunium	Ja	35c																
932370	Neptunium	Ja		60c	60c						63c		66c						
932380	Neptunium	Ja	35c		60c						63c		66c						
932390	Neptunium	Ja		60c	60c						63c		66c						
942360	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
942370	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
942380	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
942390	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
942400	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
942410	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
942420	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
942430	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
942440	Plutonium	Ja		60c	60c	62c	64c	69c			63c	78c	66c	86c		92c		97c	
952410	Americium	Ja		60c	60c						63c		66c						
952420	Americium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c						
952421	Americium	Ja		50c	60c						63c		66c						
952430	Americium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c		88c			97c	98c
952440	Americium	Ja																	
962410	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962420	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962430	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962440	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962450	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962460	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962470	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
962480	Curium	Ja		60c	60c						63c		66c						
972490	Berkelium	Ja		60c	60c						63c		66c						

Tabelle F.1: Forts.

ZAID (a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek															
			0 (b)	294 (b)	300 (c)	(d),(e)	450 (d)	479 (d)	558 (d)	560 (d)	600 (c)	(d)	900 (c)	(d)	920 (d)	1027 (d)	1145 (d)	1154 (d)
982490	Californium	Ja		60c	60c						63c		66c					
982500	Californium	Ja		60c	60c						63c		66c					
982510	Californium	Ja		60c	60c						63c		66c					
982520	Californium	Ja		60c	60c						63c		66c					

Tabelle F.1: Für MCNP verfügbare Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken bei verschiedenen Temperaturen.

Tabelle F.2: MCNP Bibliotheken — Spaltprodukte

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek															
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c)	(^d),(^e)	450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c)	(^d)	900 (^c)	(^d)	920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)
10010	Wasserstoff			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
10020	Wasserstoff			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
10030	Wasserstoff			60c		62c	64c		69c			78c						
20030	Helium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
20040	Helium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
30060	Lithium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
30070	Lithium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
40090	Beryllium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
50100	Bor	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
50110	Bor	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
60000	Kohlenstoff			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
70140	Stickstoff			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
80160	Sauerstoff			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
110230	Natrium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
130270	Aluminium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
260540	Eisen			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
260560	Eisen			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
260570	Eisen			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
260580	Eisen			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
270590	Cobalt			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
280580	Nickel			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
280600	Nickel			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
280610	Nickel			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
280620	Nickel			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					
280640	Nickel			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c					

Tabelle F.2: Forts.

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c)	(^d),(^e)	450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c)	(^d)	900 (^c)	(^d)	920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)
290630	Kupfer			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c						
290650	Kupfer			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c						
300000	Zink					62c	64c		69c			78c		86c		92c		97c	
310000	Gallium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
320720	Germanium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
320730	Germanium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
320740	Germanium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
320760	Germanium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
340770	Selen	Ja			60c						63c		66c						
350810	Brom	Ja		55c	60c						63c		66c						
360820	Krypton	Ja		50c	60c						63c		66c						
360830	Krypton	Ja		50d	60c						63c		66c						
360840	Krypton	Ja		50c	60c						63c		66c						
360851	Krypton	Ja			60c						63c		66c						
360850	Krypton	Ja			60c						63c		66c						
370850	Rubidium	Ja		55c	60c						63c		66c						
370870	Rubidium	Ja		55c	60c						63c		66c						
380900	Strontium	Ja			60c						63c		66c						
390890	Yttrium	Ja		60c	60c						63c		66c						
400900	Zirkonium ^f	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400910	Zirkonium ^f	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400920	Zirkonium ^f	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400930	Zirkonium ^f	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400940	Zirkonium ^f	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400950	Zirkonium ^f	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
400960	Zirkonium ^f	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
410950	Niob	Ja			60c						63c		66c						
420950	Molybdän	Ja		50c	60c						63c		66c						
420960	Molybdän	Ja			60c						63c		66c						
420970	Molybdän	Ja		30y	60c						63c		66c						
420980	Molybdän	Ja		30y	60c						63c		66c						
420990	Molybdän	Ja		30y	60c						63c		66c						
421000	Molybdän	Ja		30y	60c						63c		66c						
430990	Technetium	Ja		60c	60c						63c		66c						
441000	Ruthenium	Ja			60c						63c		66c						
441010	Ruthenium	Ja		50c	60c						63c		66c						
441020	Ruthenium	Ja			60c						63c		66c						
441030	Ruthenium	Ja		50c	60c						63c		66c						
441040	Ruthenium	Ja			60c						63c		66c						
441050	Ruthenium	Ja			60c						63c		66c						
441060	Ruthenium	Ja			60c						63c		66c						
451030	Rhodium	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
451050	Rhodium	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	

Tabelle F.2: Forts.

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c)	(^d),(^e)	450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c)		900 (^c)		920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)
451060	Rhodium	Ja																	
461040	Palladium	Ja		50c	60c						63c		66c						
461050	Palladium	Ja			60c							63c		66c					
461060	Palladium	Ja			60c							63c		66c					
461070	Palladium	Ja			60c							63c		66c					
461080	Palladium	Ja		50c	60c						63c		66c						
461100	Palladium	Ja			60c							63c		66c					
471070	Silber			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
471090	Silber	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
471101	Silber	Ja			60c						63c		66c						
471100	Silber	Ja			60c						63c		66c						
471110	Silber	Ja			60c						63c		66c						
481060	Cadmium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481080	Cadmium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481100	Cadmium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481110	Cadmium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481120	Cadmium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481130	Cadmium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481140	Cadmium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
481160	Cadmium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
491130	Indium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
491150	Indium	Ja		30y	60c						63c		66c						
					60c						63c		66c						
501160	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501170	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501180	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501190	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501211	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501210	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
501240	Zinn	Ja			60c						63c		66c						
511210	Antimon	Ja			60c						63c		66c						
511230	Antimon	Ja			60c						63c		66c						
511250	Antimon	Ja			60c						63c		66c						
521220	Tellur	Ja			60c						63c		66c						
521250	Tellur	Ja			60c						63c		66c						
521280	Tellur	Ja			60c						63c		66c						
521300	Tellur	Ja			60c						63c		66c						
531270	Iod	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
531290	Iod	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
531300	Iod				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
531310	Iod	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
531330	Iod	Ja																	
531350	Iod	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
541240	Xenon				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	

Tabelle F.2: Forts.

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																	
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c)	(^d),(^e)	450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c)	(^d)	900 (^c)	(^d)	920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)	
541260	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541280	Xenon				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541290	Xenon				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541300	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541311	Xenon	Ja																		
541310	Xenon	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541320	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541331	Xenon	Ja																		
541330	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541340	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541350	Xenon	Ja		50c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
541360	Xenon	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
551330	Cäsium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
551340	Cäsium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
551350	Cäsium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
551360	Cäsium			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
551370	Cäsium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561340	Barium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561350	Barium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561360	Barium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561370	Barium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561380	Barium	Ja		60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
561400	Barium	Ja			60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
571390	Lanthan	Ja		26y	60c						63c		66c							
571400	Lanthan	Ja			60c							63c		66c						
581400	Cer	Ja			60c						63c		66c							
581410	Cer	Ja			60c						63c		66c							
581420	Cer	Ja			60c						63c		66c							
581440	Cer	Ja			60c						63c		66c							
591410	Praseodym	Ja		50c	60c						63c		66c							
591430	Praseodym	Ja			60c							63c		66c						
591440	Praseodym	Ja																		
601420	Neodym	Ja		30y	60c						63c		66c							
601430	Neodym	Ja			50c	60c						63c		66c						
601440	Neodym	Ja			60c						63c		66c							
601450	Neodym	Ja		50c	60c						63c		66c							
601460	Neodym	Ja			60c							63c		66c						
601470	Neodym	Ja		50c	60c						63c		66c							
601480	Neodym	Ja		50c	60c						63c		66c							
601500	Neodym	Ja			60c						63c		66c							
611470	Promethium	Ja		50c	60c						63c		66c							
611481	Promethium	Ja			60c							63c		66c						
611480	Promethium	Ja			50c	60c						63c		66c						

Tabelle F.2: Forts.

ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c) (^d), (^e)		450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c) (^d)		900 (^c) (^d)		920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)
611490	Promethium	Ja		50c	60c						63c		66c						
611510	Promethium	Ja			60c						63c		66c						
621470	Samarium	Ja		50c	60c						63c		66c						
621480	Samarium	Ja		30y	60c						63c		66c						
621490	Samarium	Ja		50c	60c						63c		66c						
621500	Samarium	Ja		50c	60c						63c		66c						
621510	Samarium	Ja		50c	60c						63c		66c						
621520	Samarium	Ja		50c	60c						63c		66c						
621530	Samarium	Ja			60c						63c		66c						
621540	Samarium	Ja			60c						63c		66c						
631510	Europium	Ja		60c	60c						63c		66c						
631521	Europium	Ja																	
631520	Europium	Ja		50c	60c						63c		66c						
631530	Europium	Ja		60c	60c						63c		66c						
631540	Europium	Ja		50c	60c						63c		66c						
631550	Europium	Ja		50c	60c						63c		66c						
631560	Europium	Ja			60c						63c		66c						
631570	Europium	Ja			60c						63c		66c						
641520	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641530	Gadolinium	Ja																	
641540	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641550	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641560	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641570	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641580	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
641600	Gadolinium	Ja		60c	60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c
651590	Terbium	Ja			60c						63c		66c						
651600	Terbium	Ja			60c						63c		66c						
661600	Dysprosium	Ja			60c						63c		66c						
661610	Dysprosium	Ja			60c						63c		66c						
661620	Dysprosium	Ja			60c						63c		66c						
661630	Dysprosium	Ja			60c						63c		66c						
661640	Dysprosium	Ja			60c						63c		66c						
671650	Holmium	Ja			60c						63c		66c						
681620	Erbium	Ja				42c													
681640	Erbium	Ja			42c														
681660	Erbium	Ja		60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c	
681670	Erbium	Ja		60c	62c	64c	66c	69c	70c	63c	78c	66c	86c	88c	92c	96c	97c	98c	
681680	Erbium	Ja			42c														
681700	Erbium	Ja					66c		70c				88c		96c	97c	98c		
720000	Hafnium			60c	60c	62c	64c	69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
721740	Hafnium				60c	62c	64c	69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		
721760	Hafnium				60c	62c	64c	69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c		

Tabelle F.2: Forts.																			
ZAID (^a)	Nuklid	Berücksichtigt in MCMATH	Temperatur [K] der MCNP-Bibliothek																
			0 (^b)	294 (^b)	300 (^c) (^d),(^e)		450 (^d)	479 (^d)	558 (^d)	560 (^d)	600 (^c) (^d)		900 (^c) (^d)		920 (^d)	1027 (^d)	1145 (^d)	1154 (^d)	1365 (^d)
721770	Hafnium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
721780	Hafnium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
721790	Hafnium				60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
791970	Gold			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
822060	Blei			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
822070	Blei			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	
822080	Blei			60c	60c	62c	64c		69c		63c	78c	66c	86c		92c		97c	

Tabelle F.2: Für MCNP verfügbare Wirkungsquerschnitts-Bibliotheken bei verschiedenen Temperaturen.

^aBei einer ZAID handelt es sich um eine in MCNP für die Identifikation der verschiedenen Nuklide benutzte Nummerierung, die sich ergibt aus der Summe aus 10⁴ mal der Kernladungszahl Z und 10 mal der Massenzahl A. Für Isomere wird zusätzlich ein Wert von eins addiert. Zur vollständigen Angabe in MCNP wird die in der Tabelle angegebene Spezifikation der zu verwendenden Bibliothek durch einen Punkt getrennt angegeben (Briesmeister, 2000).

^bAus der MCNP-4C Bibliothek DLC200 (Oak Ridge National Laboratory, 2001; Briesmeister, 2000).

^cAus der Korea Atomic Energy Research Institute Bibliothek E6 (Gil, 2001).

^dAus der University of Texas at Austin Bibliothek UTXS6 (Abdelrahman und Abdurrahman, 1999).

^eAus der JAERI-Bibliothek FSXLIB (Kosako et al., 2003).

^fBei den Wirkungsquerschnitten des Zirkoniums wurden Anpassungen fehlerhafter Einträge vorgenommen, siehe hierzu Seamon (1992).

Literaturverzeichnis

- Abdelrahman, M. S. und Abdurrahman, N. M.: 1999, *Cross Section Libraries for Studies of Plutonium Disposition in Light Water Reactors*, Amarillo National Resource Center for Plutonium, Amarillo, TX. ANRCP-1999-28.
- Akie, H., Muromura, T., Takano, H. und Matsuura, S.: 1994, A New Fuel Material for Once-Through Weapons Plutonium Burning, *Nuclear Technology* **107**, 182–192.
- Akie, H. und Nakamura, T.: 2001, An overview of reactivity initiated accident behavior of rock-like fueled pressurized water reactors, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 363–370.
- Albright, D., Berkhout, F. und Walker, W.: 1997, *World Inventory of Plutonium and Highly Enriched Uranium 1996*, Oxford University Press.
- Amaya, M., Hirai, M., Sakurai, H., Ito, K., Sasaki, M., Nomata, T., Kaminmura, K. und Iwasaki, R.: 2002, Thermal conductivities of irradiated UO_2 and $(U,Gd)_2O_3$ pellets, *Journal of Nuclear Materials* **200**, 57–64.
- American Physical Society: 1978, Report to the American Physical Society by the Study Group on Nuclear Fuel Cycles and Waste Management, *Review of Modern Physics* **50**(1 Part II), 1–185.
- Armantrout, G. et al.: 1998, Plutonium Immobilization Form Evaluation, Paper presented at Waste Management 98, March 1–5, Albuquerque, NM.
- Asou, M. und Porta, J.: 1997, Prospects for poisoning reactor cores of the future, *Nuclear Engineering and Design* **168**, 261–270.
- Audi, G. und Wapstra, A. H.: 1995, The 1995 update to the atomic mass evaluation, *Nuclear Physics A* **595**, 409–480.
- Bairiot, H., van Vliet, J., Chiarelli, G., Edwards, J., Nagai, S. H. und Reshetnikov, F.: 2000, Overview of MOX Fuel Fabrication Achievements, in *International Atomic Energy Agency (2000)*, S. 81–101.
- Barleon, L., Chauvistré, E., Daase, C., von Ehrenstein, D., Eisenbart, C., Gmelin, W., Häckel, E., Kankeleit, E., Marauhn, T., Pistner, C. und Ratsch, U.: 2004, *Wohin mit dem Plutonium? Optionen und Entscheidungskriterien*, Bd. 31 von *Reihe B*, Forschungsstätte der evangelischen Studiengemeinschaft e. V., Heidelberg. 108 Seiten.

- Bondarenko, A. V., Komissarov, O. V., Kozmenkov, Y. K., Matveev, Y. V., Orekhov, Y. I., Pivovarov, V. A. und Sharapov, V. N.: 2003, Reactor physics and safety aspects of various design options of a Russian light water reactor with rock-like fuels, *Journal of Nuclear Materials* **319**, 159–165.
- Brady, M. C. und England, T. R.: 1989, Delayed Neutron Data and Group Parameters for 43 Fissioning Systems, *Nuclear Science and Engineering* **103**, 129–149.
- Briesmeister, J. F.: 2000, *MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Version 4C*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico.
- Bronstein, I. N. und Semendjajew, K. A.: 1989, *Taschenbuch der Mathematik*, Verlag Harry Deutsch, Frankfurt/Main.
- Bunn, M., Fetter, S., Holdren, J. P. und van der Zwaan, B.: 2003, *The Economics of Reprocessing vs. Direct Disposal of Spent Nuclear Fuel*, Belfer Center for Science and International Affairs, Harvard University, Cambridge, Massachusetts.
- Burghartz, M., Ledergerber, G., Ingold, F., Heimgartner, P. und Degueldre, C.: 2001, X-ray diffraction analysis and data interpretation of stabilized zirconia inert matrix fuel doped with plutonium, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 247–250.
- Carter, L. J. und Pigford, T. H.: 1999, Confronting the Paradox in Plutonium Policies, *Issues in Science and Technology*.
- Cetnar, J., Gudowski, W. und Wallenius, J.: O.D., *User Manual for Monte-Carlo Continuous Energy Burnup (MCB) Code — Version 1C*, Department of Nuclear and Reactor Physics, Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden.
- Charpin, J.-M., Dessus, B. und Pellat, R.: 2000, Étude économique prospective de la filière électrique nucléaire, Rapport au Premier ministre de France.
- Chawla, R., Grimm, P., Heimgartner, P., Jatuff, F., Ledergerber, G., Lüthi, A., Murphy, M., Seiler, R. und van Geemert, R.: 2001, Integral measurements with a plutonium inert matrix fuel rod in a heterogeneous light water reactor lattice, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 359–362.
- Chodak, P. et al.: 1996, A Pressurized Water Reactor Deep Burn Plutonium Fuel Cycle, 4th International Conference in Nuclear Engineering (ICONE-4).
- Chow, B. G.: 1996, Plutonium Economics and the Civilian Nuclear Future, in *Sutcliffe (1996)*, S. 25–34.
- Chow, B. G. und Solomon, K. A.: 1993, *Limiting the Spread and Use of Weapons-grade Fissile Material*, RAND Report.
- Committee on International Security and Arms Control (CISAC): 1994, *Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium*, National Academy of Sciences, National Academy Press, Washington D. C.

- Committee on International Security and Arms Control (CISAC): 1995, *Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. Reactor-Related Options*, National Academy of Sciences, National Academy Press, Washington D. C.
- Committee on International Security and Arms Control (CISAC): 1999, *Panel to Review the Spent-Fuel Standard for Disposition of Excess Weapons Plutonium. Interim Report*, National Academy of Sciences.
- Committee on International Security and Arms Control (CISAC): 2000, *The Spent-Fuel Standard for Disposition of Excess Weapons Plutonium. Application to Current DOE Options*, National Academy of Sciences, National Academy Press, Washington D. C. Prepublication Copy.
- Croff, A. G.: 1980, *A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code*, Oak Ridge National Laboratory. ORNL/TM-7175, in RISC Computer Code Collection, ORIGEN 2.2, June 2002.
- Croff, A. G.: 1983, ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials, *Nuclear Technology* **62**, 335–352.
- Cross Section Evaluation Working Group: 2001, *ENDF-102 Data Formats And Procedures For The Evaluated Nuclear Data File ENDF-6*, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, N.Y. BNL-NCS-44945-01/04-Rev.
- Damen, P. M. G. und Koosterman, J. L.: 2001, Dynamics aspects of plutonium in an inert matrix, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 371–374.
- Degueldre, C.: 2003, *Status of the Initiative for Inert Matrix Fuel*, Paul Scherrer Institute (PSI). Proceedings of the 9th IMF Workshop, 9–12 September 2003, Kendal, Cumbria, United Kingdom, BNFL.
- Degueldre, C. und Meyer, M. K.: 2003, *Revisiting IMF material criteria for utilisation in reactors*, Paul Scherrer Institute (PSI) and Argonne National Laboratory (ANL). Proceedings of the 9th IMF Workshop, 9–12 September 2003, Kendal, Cumbria, United Kingdom, BNFL.
- Degueldre, C., Pouchon, M., Streit, M., Zaharko, O. und Michiel, M. D.: 2001, Analysis of porous features in zirconia based inert matrix, impact on the material qualification, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 241–246.
- Degueldre, C. und Yamashita, T.: 2003, Inert matrix fuel strategie in the nuclear fuel cycle: the status of the initiative efforts at the 8th Inert Matrix Fuel Workshop, *Journal of Nuclear Materials* **319**, 1–5.
- Deutsche Physikalische Gesellschaft, AKE und AKA: 2000, Symposium Plutonium — und was nun?, in W. Blum (Hrsg.), *Energie, Plutonium, Strom und die Umwelt — 17 Vorträge der DPG-Tagungen Heidelberg (1999) und Dresden (2000)*, Deutsche Physikalische Gesellschaft (DPG), Bad Honnef.

- Deutscher Normenausschuß, (Hrsg.): 1973, *Begriffe der Kerntechnik in sechs Sprachen*, Beuth-Vertrieb GmbH, Berlin.
- Deutsches Institut für Normung e.V.: 1994, *Einsatz von Berechnungssystemen beim Nachweis der Kritikalitätssicherheit*. DIN 25478.
- DeVolpi, A.: 1979, *Proliferation, Plutonium and Policy: Institutional and Technological Impediments to Nuclear Weapons Propagation*, Pergamon Policy Studies, Pergamon Press. New York.
- Driscoll, M. J., Downar, T. J. und Pilat, E. E.: 1990, *The Linear Reactivity Model for Nuclear Fuel Management*, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois.
- Dyer, J. S.: 1999, *A Methodology for the Analysis and Selection of Alternatives for the Disposition of Surplus Plutonium*, Amarillo National Resource Center for Plutonium, Amarillo, TX 79101. ANRCP-1999-23.
- Dyer, J. S., Edmunds, T., Butler, J. C. und Jia, J.: 1996, *A Proposed Methodology for the Analysis of Alternatives for the Disposition of Surplus Plutonium*, Amarillo National Resource Center for Plutonium.
- Dyer, J. S., Edmunds, T., Butler, J. C. und Jia, J.: 1997a, *A Multiattribute Utility Analysis of Alternatives for the Disposition of Surplus Weapons-grade Plutonium*, Amarillo National Resource Center for Plutonium.
- Dyer, J. S., Edmunds, T., Butler, J. C. und Jia, J.: 1997b, *Evaluation of Alternatives for the Disposition of Surplus Weapons-Usable Plutonium*, Amarillo National Resource Center for Plutonium, Amarillo, TX 79101. ANRCP-1997-1.
- Eisenführ, F. und Weber, M.: 2003, *Rationales Entscheiden*, Springer Verlag, Berlin. 4. Auflage.
- Emendörfer, D. und Höcker, K.-H.: 1982, *Theorie der Kernreaktoren. Band 1: Der stationäre Reaktor*, B.I.-Wissenschaftsverlag, Mannheim.
- Emendörfer, D. und Höcker, K.-H.: 1993, *Theorie der Kernreaktoren. Band 2: Der instationäre Reaktor*, B.I.-Wissenschaftsverlag, Mannheim.
- Etmuss, M. und Bröskamp, H.: 2000, Status und Perspektiven der Plutoniumverwertung in Deutschland durch den Einsatz von MOX-Brennelementen. Vortrag anlässlich eines Workshops zu Optionen bei der Verwertung und Entsorgung von Plutonium, in *Forschungszentrum Jülich (2000)*, S. 15–40.
- Euratom Supply Agency (ESA): 2001, *Annual Report 2001*, European Communities.
- Euratom Supply Agency (ESA): 2003, *Annual Report 2002*, European Communities.
- Euratom Supply Agency (ESA): 2004, *Annual Report 2003*, European Communities.

- Feiveson, H. A.: 1978, Proliferation Resistant Nuclear Fuel Cycles, *Ann. Rev. Energy* **3**, 357–394.
- Forschungsverbund Naturwissenschaften, Abrüstung und internationale Sicherheit (FONAS): 2001, Präventive Rüstungskontrolle, *Wissenschaft und Frieden* **19**. Dossier Nr. 38.
- Forschungszentrum Jülich: 2000, *Workshop zu Optionen bei der Verwertung und Entsorgung von Plutonium. Forschungszentrum Jülich, 13.–14. Januar 2000*, Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik. Tagungsbericht.
- Galperin, A.: 1987, Gd Burnable Poison System for Reactivity Control of the First Cycle of a PWR, *Annals of Nuclear Energy* **14**(1), 53–57.
- Galperin, A., Segev, M. und Radkowsky, A.: 1986, Substitution of the Soluble Boron Reactivity Control System of a Pressurized Water Reactor by Gadolinium Burnable Posions, *Nuclear Technology* **75**, 127–133.
- Garwin, R. L.: 1994, Explosive Properties of Various Types of Plutonium, in *Garwin et al. (1994)*.
- Garwin, R. L., Grubb, M. und Matanle, E.: 1994, *Managing the Plutonium Surplus: Applications and Technical Options*, NATO ASI Series, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht.
- Generation IV International Forum: 2002, *A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems*, U.S. Department of Energy, Nuclear Energy Research Advisory Committee. GIF-002-00.
- German-American Academic Council und National Academy of Sciences: 1995, U.S.-German Cooperation in the Elimination of Excess Weapons Plutonium, National Academy Press, Washington, D. C.
- Gil, C.-S.: 2001, *Generation of the continuous energy cross section data for the MCNP code*, Nuclear Data Evaluation Laboratory, Korea Atomic Energy Research Institute, Dukjin-dong 150, Yusong-gu, Daejeon, Korea.
- Giraud, J.-P. und de Lavergne, J.-G. D.: 1997, Kostenvorteile durch Wiederaufarbeitung, *Atomwirtschaft-Atomtechnik (atw)* **42**(5).
- Glaser, A.: 1998, Abbrandrechnungen für ein System zur Eliminierung von Waffenplutonium, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik/IANUS, TU Darmstadt.
- Glasstone, S. und Sesonske, A.: 1994, *Nuclear Reactor Engineering. Reactor Design Basics*, Bd. 1, 4 edn, Chapman & Hall, New York.
- Gray, L. W. und Gould, T. H.: 1997, Immobilization Technology Down-Selection Radiation Barrier Approach, Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-ID-127320.

- Hensing, I. und Schulz, W.: 1995, *Wirtschaftlichkeitsvergleich verschiedener Entsorgungspfade von Kernkraftwerken — Eine Kostensimulation alternativer Strategien aus deutscher Sicht*, Bd. 45 von *Schriften des Energiewirtschaftlichen Instituts*, R. Oldenburg Verlag, München.
- Hinton, J. P. et al.: 1996, *Proliferation Vulnerability Red Team Report*, U. S. Department of Energy, Sandia National Laboratories. SAND97-8203.
- Institute for Science and International Security (ISIS): 2004, *Global Plutonium and Highly Enriched Uranium Stocks*. www.isis-online.org.
- International Atomic Energy Agency: 1980, *International Nuclear Fuel Cycle Evaluation. Summary Volume*, Vienna, Austria.
- International Atomic Energy Agency: 1990, *Recycling of plutonium and uranium in water reactor fuels. Proceedings of a Technical Committee Meeting, Cadarache, France, 1989*, Vienna, Austria.
- International Atomic Energy Agency: 1996, *Safe core management with burnable absorbers in WWERs*, Vienna, Austria. IAEA-TECDOC-858.
- International Atomic Energy Agency: 1998, *Communication received from certain member states concerning their policies regarding the management of plutonium*, Vienna, Austria. Information Circular INFCIRC/549.
- International Atomic Energy Agency: 2000, *MOX Fuel Cycle Technologies for Medium and Long Term Deployment. Proceedings of a Symposium held in Vienna, Austria, 17.–21. May 1999*, Vienna, Austria. IAEA-CSP-3/P.
- International Atomic Energy Agency: 2002, *Core Management and Fuel Handling for Nuclear Power Plants*, Vienna, Austria. Safety Standards Series No. NS-G-2.5.
- International Atomic Energy Agency: 2003a, *Nuclear Fuel Cycle Information Service*, Vienna, Austria. www-nfcis.iaea.org.
- International Atomic Energy Agency: 2003b, *Status and Advances in MOX Fuel Technology*, Vienna, Austria. Technical Report Series No. 415.
- International Atomic Energy Agency: 2004, *Methodology for the assessment of innovative nuclear reactors and fuel cycles: Report of Phase 1B (first part) of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO)*, Vienna, Austria. IAEA-TECDOC-1434.
- Janberg, K.: 2000, Fragen der Machbarkeit bei Alternativen zum MOX-Einsatz, in *Forschungszentrum Jülich (2000)*, S. 135–150. Vortrag anlässlich eines Workshops zu Optionen bei der Verwertung und Entsorgung von Plutonium.

- Kankeleit, E., Küppers, C. und Imkeller, U.: 1989, Bericht zur Waffentauglichkeit von Reaktorplutonium, IANUS-Arbeitsbericht 1/1989, Darmstadt. Translation of german original 1989 by Berkeley Scientific Translation Service: Report on the Usability of Reactor-Plutonium in Weapons. UCRL-TT-112792, Livermore, Januar 1993.
- Kasemeyer, U.: 1998, *Konzeption eines uranfreien LWR-Kerns zur Plutoniumverbrennung*, Dissertation, Département de Physique, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne. Dissertation No. 1757.
- Kasemeyer, U., Hellwig, C., Lee, Y.-W., Ledergerber, G., Sohn, D. S., Gates, G. A. und Wiesenack, W.: 2001, The irradiation test of Inert-Matrix Fuel in comparison to uranium plutonium mixed oxide fuel at the Halden Reactor, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 309–312.
- Kasemeyer, U., Paratte, J.-M., Grimm, P. und Chawla, R.: 1998, Comparison of pressurized water reactor core characteristics for 100% plutonium-containing loadings, *Nuclear Technology* **122**, 52–63.
- Kloosterman, J. L. und Damen, P. M. G.: 1999, Reactor physics aspects of plutonium burning in inert matrix fuels, *Journal of Nuclear Materials* **274**, 112–119.
- Koelzer, W.: 1989, *Plutonium*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Hauptabteilung Sicherheit. KfK 4516.
- Korea Atomic Energy Research Institute: 2004, Chart of the Nuclides. Nuclear Data Evaluation Lab.: www2.bnl.gov/ton/.
- Kosako, K., Yamano, N., Fukahori, T., Shibata, K. und Hasegawa, A.: 2003, *The Libraries FSXLIB and MATXSLIB based on JENDL-3.3*, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). JAERI-Data/Code 2003-011.
- Küppers, C., Liebert, W. und Sailer, M.: 1999, *Realisierbarkeit der Verglasung von Plutonium zusammen mit hochradioaktiven Abfällen sowie der Fertigung von MOX-Lagerstäben zur Direkten Endlagerung als Alternativen zum Einsatz von MOX-Brennelementen*, Öko-Institut e. V., Darmstadt. Studie im Auftrag der Freien und Hansestadt Hamburg.
- Ledergerber, G., Degueudre, C., Heimgartner, P., Pouchon, M. A. und Kasemeyer, U.: 2001, Inert matrix fuel for the utilisation of plutonium, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 301–308.
- Liebert, W.: 1997, Managing Proliferation Risks from Civilian and Weapon-Grade Plutonium and Enriched Uranium: A Comprehensive Cut-Off Convention, in J. Rotblat und M. Monuma (Hrsg.), *Proceedings of the 45th Pugwash Conference on Science and World Affairs: Towards a Nuclear-Weapon-Free-World, Hiroshima (Japan), 23–29. Juli 1995*, World Scientific, Singapore, S. 418–435.

- Liebert, W., Glaser, A. und Pistner, C.: 1997, The Role of Accelerator-Based Systems for Optimal Elimination of Plutonium to Minimize Global Proliferation Risks, in H. Condé (Hrsg.), *Proceedings of the Second International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*, Bd. 1, Uppsala University, Kalmar, Sweden, S. 377–384.
- Liebert, W., Glaser, A. und Pistner, C.: 2000, Elimination versus Disposal Options for Plutonium, in M. B. Kalinowski (Hrsg.), *Global Elimination of Nuclear Weapons*, Nomos, Baden-Baden, S. 219–226.
- Liebert, W. und Pistner, C.: 2001a, Disposition of Plutonium Stockpiles, *XIII International Amaldi Conference on Problems of Global Security (Rome 30 November – 2 Dezember 2000)*, Atti dei Convegni Lincei 167, Accademia Nazionale dei Lincei, Roma. Auch als IANUS-Arbeitsbericht 4/2001.
- Liebert, W. und Pistner, C.: 2001b, Technische Optionen zur Beseitigung von zivilen Plutoniumbeständen zur Minimierung des Proliferationsrisikos, in *Forschungsverbund Naturwissenschaften, Abrüstung und internationale Sicherheit (FONAS) (2001)*, S. 13–17.
- Liebert, W., Pistner, C. und Glaser, A.: 2000, Umgang mit deutschem Reaktorplutonium im europäischen Kontext, in *Deutsche Physikalische Gesellschaft, AKE und AKA (2000)*, S. 125–145.
- Liner, R. T., Outlaw, D. A. und Straker, E. A.: 1977, *A Methodology for Evaluating the Proliferation Resistance of Alternative Nuclear Power Systems*, Science Applications, Inc., Virginia. SAI Report No. SAI-78-673-WA.
- MacFarlane, R. E. und Muir, D. W.: 1994, *The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico. LA-12470-M.
- Magill, J.: 1999, *Nuclides 2000: An Electronic Chart of the Nuclides on CD-ROM*, European Commission, Institute for Transuranium Elements, Karlsruhe, Germany. EUR 18737 EN.
- Mark Hibbs: 1997, Continuity of Safeguards Knowledge at issue in IAEA-AECB Negotiations, *Nuclear Fuel* S. 13–14.
- Mark Hibbs: 1998, German utilities won't miss recycle given contract prices, *Nuclear Fuel* **23**(24), 14–15.
- Mark Hibbs: 2000, Pakistani Separation Plant Now Producing 8–10 kg Plutonium/yr, *Nuclear Fuel* S. 1–15.
- Mark, J. C.: 1993, Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium, *Science & Global Security* **4**, 111–128.
- Moore, R. L., Schnitzler, B. G., Wemple, C. A., Babcock, R. S. und Wessol, D. E.: 1995, *MOCUP: MCNP-ORIGEN2 Coupled Utility Program*, Idaho National Engineering Laboratory. INEL-95/0523.

- Mourtzanos, K., Housiadas, C. und Antonopoulos-Domis, M.: 2001, Calculation of the moderator temperature coefficient of reactivity for water moderated reactors, *Annals of Nuclear Energy* **28**, 1773–1782.
- Nartker, M.: 2005, U.S. Sees Progress on Closing Russian Plutonium-Producing Reactors, Energy Official Says, *Global Security Newswire*.
- Nisan, S. und Lenain, R.: 1990, Neutronic Feasibility of 100% MOX Fuel Recycling in APWRs, in *International Atomic Energy Agency (1990)*, S. 262–271.
- Nuclear Energy Research Advisory Committee (NERAC): 2000, *Annex: Attributes of Proliferation Resistance for Civilian Nuclear Power Systems Annex: Attributes of Proliferation Resistance for Civilian Nuclear Power Systems*, U.S. Department of Energy.
- Nuclear Energy Research Advisory Committee (NERAC): 2001, *Technological Opportunities To Increase The Proliferation Resistance Of Global Civilian Nuclear Power Systems (TOPS)*, U.S. Department of Energy.
- Oak Ridge National Laboratory: 2001, *RSICC Data Library Collection, MCNPDATA*. DLC-200.
- OECD/NEA: 1994, *The Economics of the Nuclear Fuel Cycle*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris.
- OECD/NEA: 1995a, *Physics of Plutonium Recycling. Vol. II. Plutonium Recycling in Pressurized-water Reactors*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris.
- OECD/NEA: 1995b, *Physics of Plutonium Recycling. Vol. III. Void reactivity effects in PWRs*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris.
- OECD/NEA: 2001, *JANIS User's Guide*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris.
- OECD/NEA: 2003a, *Burn-up Credit Criticality Benchmark. Phase IV-A: Reactivity Prediction Calculations for Infinite Arrays of PWR MOX Fuel Pin Cells*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris. NEA/NSC/DOC(2003)3.
- OECD/NEA: 2003b, *Burn-up Credit Criticality Benchmark. Phase IV-B: Results and Analysis of MOX Fuel Depletion Calculations*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris. NEA/NSC/DOC(2003)3.
- OECD/NEA: 2004, *JANIS User's Guide*, Organisation for Economic Co-Operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris.
- Oversby, V. M., McPheeters, C. C., Degueldre, C. und Paratte, J. M.: 1999, Control of civilian plutonium inventories using burning in a non-fertile fuel, *Journal of Nuclear Materials* **245**(1), 17–26.

- Paratte, J. M., Akie, H., Chawla, R., Delpech, M., Kasemeyer, U., Kloosterman, J. L., Konings, R. und Lombardi, C.: 1997, Benchmark Comparisons of Calculations of LWR Fuel Cells with Uranium-Free Fuels, *GLOBAL'97, Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems*, Bd. 2, Yokohama, S. 1129–1135.
- Paratte, J. M., Akie, H., Chawla, R., Delpech, M., Kloosterman, J. L., Lombardi, C., Mazzola, A., Pelloni, S., Pénéliou, Y. und Takano, H.: 2000, Comparisons of Cell Calculations for Uranium-Free Light Water Reactor Fuels, *Nuclear Technology* **130**, 159–175.
- Paratte, J. M. und Chawla, R.: 1995, On the Physics Feasibility of LWR Plutonium Fuels without Uranium, *Annals of Nuclear Energy* **22**(7), 471–481.
- Paratte, J. M., Chawla, R., Akie, H., Damen, P. M. G., Joo, H. K., Mikolas, P., Padovani, E., Pénéliou, Y. und Youinou, G.: 2001, A numerical neutronics benchmark study for inert matrix plutonium fuels in uranium dioxide and mixed plutonium-uranium dioxide environments, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3–4), 335–342.
- Pearlstein, S.: 1999, The effective delayed neutron fraction for bare-metal criticals, *Nuclear Technology* **128**, 402–408.
- Pellaud, B.: 2002, Proliferation Aspects of Plutonium Recycling, *Journal of Nuclear Materials Management* **XXXI**(1), 30–38.
- Pelloni, S., Kasemeyer, U., Paratte, J. M. und Chawla, R.: 1998, Impact of methods and data on calculational results for LWR lattices employing uranium-free plutonium fuels, *Kerntechnik* **63**(5–6), 239–248.
- Pistner, C.: 1998, *Entwicklung und Validierung eines Programmsystems für Zellabbrandrechnungen plutoniumhaltiger Brennstoffe*, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Technische Universität Darmstadt.
- Pistner, C.: 2002, Non-proliferation aspects of inert matrix fuels for burning plutonium in light water reactors, Paper presented at the 14th International Summer Symposium on Science and World Affairs, 15–22 July 2002, University of Illinois at Urbana-Champaign.
- Pistner, C., Glaser, A. und Liebert, W.: 2001, Der Umgang mit zivilen Plutoniumbeständen aus Sicht der Nichtverbreitung kernwaffenfähiger Materialien, in W. Bender und W. Liebert (Hrsg.), *Wege zu einer nuklearwaffenfreien Welt*, Agenda, S. 127–150.
- Pistner, C. und Liebert, W.: 2001, Nukleare Last des Kalten Krieges – Beseitigung von Plutoniumbeständen, *Physik in unserer Zeit* **32**(1), 18–25.
- Pistner, C., Liebert, W. und Fujara, F.: 2006, Neutronics calculations on the impact of burnable poisons to safety and non-proliferation aspects of inert matrix fuel, *Journal of Nuclear Materials*. Proceedings of the 10th IMF Workshop, 1.–3. Juni 2005, Strasburg, Frankreich.
- Porta, J. und Asou, M.: 2001, Erbium: alternative poison? Stabilisation additive? What future?, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3–4), 347–350.

- Poston, D. I. und Trellue, H. R.: 1999, *User's Manual, Version 2.0 for MonteBurns, Version 1.0*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico. LA-UR-99-4999.
- Renier, J.-P. A. und Grossbeck, M. L.: 2001, *Development Of Improved Burnable Poisons For Commercial Nuclear Power Reactors*, Oak Ridge National Laboratory. ORNL/TM-2001/238.
- Schlosser, G. J. und Krebs, W.-D.: 1993, Experience in PWR and BWR mixed-oxide fuel management, *Nuclear Technology* **102**, 54–67.
- Schram, R. P. C., Bakker, K., Hein, H., Boshoven, J. G., van der Laan, R. R., Sciolla, C. M., Yamashita, T., Helliw, C., Ingold, F., Conrad, R. und Casalta, S.: 2001, Design and fabrication aspects of a plutonium-incineration experiment using inert matrices in a 'Once-Through-Then-Out' mode, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 259–262.
- Seaborg, G. T., McMillian, E. M., Kennedy, J. W. und Wahl, A. C.: 1946, Radioactive element 94 from deuterons on uranium, *Physical Review* **69**(7–8), 366–367.
- Seamon, R. E.: 1992, *Revised ENDF/B-V Zirconium Cross Sections*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico. X-6:RES-92-324 (LA-UR-98-3690).
- Shelley, A., Akie, H., Takano, H. und Sekimoto, H.: 2000, Parametric Studies on Plutonium Transmutation using Uranium-Free Fuels in Light Water Reactors, *Nuclear Technology* **131**, 197–209.
- Smidt, D.: 1976, *Reaktortechnik*, Bd. 2, G. Braun, Karlsruhe.
- Smidt, D.: 1979, *Reaktor-Sicherheitstechnik*, Springer Verlag, Berlin.
- Spector, L. S., McDonough, M. G. und Medeiros, E. S.: 1995, *Tracking Nuclear Proliferation. A Guide in Maps and Charts, 1995*, Carnegie Endowment for International Peace, Washington D. C.
- Stanculescu, A., Kasemeyer, U., Paratte, J.-M. und Chawla, R.: 1999, *Mixed PWR Core Loadings with Inert Matrix Pu-Fuel Assemblies*, Paul Scherrer Institut, Villigen, Switzerland. Scientific Report 1998. Volume IV. Nuclear Energy and Safety.
- Stanford Materials: 2003, Erbium (er) product supplier, www.stanfordmaterials.com/er.html.
- Streit, M., Tverberg, T., Wiesenack, W. und Vettraino, F.: 2005, *Inert Matrix and Thorium Fuel Irradiation at OECD Halden Reactor*. Proceedings of the 10th IMF Workshop, 1–3 Juni 2005, Strassburg, Frankreich.
- Sutcliffe, W. G.: 1996, *Selected Papers form Global 95 Concerning Plutonium*, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California. UCRL-ID-124105.

- Takagi, J., Schneider, M., Barnaby, F., Hokimoto, I., Hosokawa, K., Kamisawa, C., Nishio, B., Rossnagel, A. und Sailer, M.: 1997, *Comprehensive Social Impact Assessment of MOX Use in Light Water Reactors. Final Report of the International MOX Assessment*, Citizens' Nuclear Information Center, IMA Project.
- Tuttle, R. J.: 1975, Delayed-Neutron Data for Reactor-Physics Analysis, *Nuclear Science and Engineering* **56**, 37–71.
- United Kingdom Ministry of Defence: 1998, Strategic Defence Review, White Paper. Presented to Parliament by the Secretary of State for Defence by Command of Her Majesty.
- U.S. Department of Energy: 1993, *DOE Fundamentals Handbook. Nuclear Physics and Reactor Theory. Vol. 2*, Washington, D. C. DOE-HDBK-1019/2-93.
- U.S. Department of Energy: 1996, *Plutonium: The First 50 Years — United States Plutonium Production, Acquisition, and Utilization from 1944 to 1994*, Washington, D. C.
- U.S. Department of Energy: 1997, *Final Nonproliferation and Arms Control Assessment of Weapons-Usable Fissile Material Storage and Excess Plutonium Disposition Alternatives*, Washington, D. C. DOE/NN-0007.
- U.S. Department of Energy, Office of Fissile Materials Disposition: 1995, *The Spent Fuel Standard. Rev. 0*, Washington, D. C.
- U.S. Nuclear Regulatory Commission: 2005, *Environmental Impact Statement on the Construction and Operation of a Proposed Mixed Oxide Fuel Fabrication Facility at the Savannah River Site, South Carolina*, Washington D. C. NUREG-1767.
- U.S./Russia: 2000, Agreement Between the Government of The United States of America and The Government of The Russian Federation concerning the Management and Disposition of Plutonium Designated as No Longer Required for Defence Purposes and Related Cooperation.
- Verein Deutscher Ingenieure: 1994, *VDI-Wärmeatlas. Berechnungsblätter für den Wärmeübergang*, VDI Verlag, Düsseldorf. Siebte, erweiterte Auflage.
- Waters (ed.), L. S.: 2002, *MCNPX User's Manual, Version 2.3.0*. LA-UR-02-2607.
- Winter, M.: 2003, *Web ElementsTM, the periodic table on the WWW*, The University of Sheffield and WebElements Ltd, UK. www.webelements.com.
- Wolfram, S.: 1999, *The Mathematica Book, 4th ed.*, Wolfram Media/Cambridge University Press.
- Xu, Z.: 2003, *Design Strategies for Optimizing High Burnup Fuel in Pressurized Water Reactors*, Dissertation, Department of Nuclear Engineering, Massachusetts Institute of Technology.

- Yamashita, T., Akie, H., Nakano, Y., Kuramoto, K., Nitani, N. und Nakamura, T.: 2001, Current status of researches on the plutonium rock-lite oxide fuel and its burning in light water reactors, *Progress in Nuclear Energy* **38**(3-4), 327–330.
- Ziegler, A.: 1983, *Lehrbuch der Reaktortechnik. Band 1 Reaktortheorie*, Springer-Verlag, Berlin.
- Ziegler, A.: 1984, *Lehrbuch der Reaktortechnik. Band 2 Reaktortechnik*, Springer-Verlag, Berlin.

Danksagung

Diese Arbeit entstand im Kontext verschiedener Projekte der *Interdisziplinären Arbeitsgruppe Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit* (IANUS) der Technischen Universität Darmstadt. Dieser Arbeitsgruppe bin ich für viele Jahre der intensiven und anregenden Zusammenarbeit zu großem Dank verpflichtet. Dabei haben insbesondere Prof. Franz Fajara und Dr. Wolfgang Liebert durch die Betreuung dieser Arbeit und die inhaltlichen Diskussionen wesentlich zu Entstehung und Verlauf der dargestellten Untersuchungen beigetragen. Mit Matthias Englert konnte ich viele Probleme diskutieren, seine Hilfe war daher auch sehr wichtig für das Gelingen dieser Arbeit. Auch Prof. Wolfgang Bender und Dr. Niels Peter Thomas möchte ich für anregende Diskussionen zu Bewertungsfragen bei modernen Technologien meinen Dank aussprechen. Ganz besonders aber ist Prof. Egbert Kankleit hervorzuheben, dessen kritischer Geist für mich wie die gesamte Arbeitsgruppe unverzichtbar ist.

Weiterhin hat das *Institut für Festkörperphysik* durch die Bereitstellung von umfangreichen Rechnerkapazitäten die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Computersimulationen erst möglich gemacht. Darüber hinaus haben mir Steffen Prohaska und Achim Gädke bei immer wieder auftauchenden Fragestellungen zu UNIX und MCNP wichtige Hilfe geleistet.

Für die Einbettung der physikalischen Fragestellungen in ihren inhaltlichen Kontext habe ich besonders von den *International Summer Symposia on Science and World Affairs* profitieren können. Daher möchte ich Dr. David Wright und Dr. Lisbeth Gronlund für ihren unermüdlichen Einsatz zur Schaffung eines solch wertvollen internationalen Diskussionsforums meinen Dank aussprechen.

Dabei sind natürlich auch die Kollegen aus dem *Forschungsverbund Naturwissenschaften, Abrüstung und internationale Sicherheit* (FONAS), besonders Dr. Götz Neuneck und Dr. Jürgen Altmann zu nennen, die diesen deutschen Forschungsverbund mit hohem Engagement mitgetragen und dadurch auch zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Von besonderer Bedeutung aber sind natürlich immer diejenigen, die tagtäglich an unserer Seite arbeiten und dabei unsere Launen ertragen müssen. Dafür möchte ich Brigitte Schulda danken, die immer zur Stelle war, wenn es nötig war.

Und dann muss natürlich Dr. Alexander Glaser gewürdigt werden: Danke für viele Jahre der gemeinsamen Arbeit. Live long and prosper.

Auch meiner Mutter Katharina Pistner möchte ich herzlich für ihr Vertrauen in mich Danke sagen. Sie hat mir über all die Jahre immer den Rücken gestärkt.

Schließlich möchte ich ganz besonders meiner Lebenspartnerin Tanja Heuser meinen ganz besonderen Dank aussprechen. Sie hat mir in vielen schweren Stunden zur Seite gestanden und mich zum Durchhalten bewegt. Ohne sie wäre diese Arbeit wohl nicht fertiggestellt worden.

Lebenslauf

Name: Christoph Pistner
Anschrift: Eckhardtstrasse 6, 64289 Darmstadt
geboren am: 06.07.1969 in Bensheim/Bergstraße

Berufliche Tätigkeit

seit März 2005 Wissenschaftlicher Mitarbeiter beim
Öko-Institut Darmstadt e.V.
2000–2004 Wissenschaftlicher Mitarbeiter
bei der Interdisziplinären Arbeitsgruppe
Naturwissenschaft, Technik und Sicherheit (IANUS)
der Technischen Universität Darmstadt
1998–2000 Wissenschaftliche Hilfskraft mit Abschluss
bei IANUS

Hochschulausbildung

26. Mai 1998 Diplom Physik am Institut für Kernphysik der TUD
1990–1998 Studium der Physik an der
Technischen Universität Darmstadt

Zivildienst

1988–1990 Hessische Landesanstalt für Umwelt

Schulausbildung

Juli 1988 Abitur
1979–1988 Starkenburg Gymnasium in Heppenheim/Bergstraße
1975–1979 Nibelungenschule in Heppenheim

